



**HAL**  
open science

# Ellipsométrie spectroscopique conventionnelle et généralisée de milieux anisotropes : application à l'étude des propriétés optiques de l'iodure mercurique (HgI<sub>2</sub>)

Aotmane En Naciri

► **To cite this version:**

Aotmane En Naciri. Ellipsométrie spectroscopique conventionnelle et généralisée de milieux anisotropes : application à l'étude des propriétés optiques de l'iodure mercurique (HgI<sub>2</sub>). Physique [physics]. Université Paul Verlaine - Metz, 1999. Français. NNT : 1999METZ013S . tel-01775790

**HAL Id: tel-01775790**

**<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01775790>**

Submitted on 24 Apr 2018

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



## AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : [ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr](mailto:ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr)

## LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

[http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg\\_droi.php](http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php)

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

6 149604



S1M3 99/13

UNIVERSITÉ DE METZ  
INSTITUT DE PHYSIQUE ÉLECTRONIQUE ET DE CHIMIE

# THÈSE

PRESENTÉE POUR OBTENIR LE GRADE DE  
DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE METZ

SPÉCIALITÉ : PHYSIQUE-INSTRUMENTATION

PAR

**Aotmane EN NACIRI**

| BIBLIOTHEQUE UNIVERSITAIRE<br>- METZ |               |
|--------------------------------------|---------------|
| N° inv.                              | 19990295      |
| Cote                                 | S1M3<br>99/13 |
| Loc                                  | Magasin       |

**ELLIPSOMÉTRIE SPECTROSCOPIQUE CONVENTIONNELLE  
ET GÉNÉRALISÉE DE MILIEUX ANISOTROPES.**

**Application à l'étude des propriétés optiques de l'iodure mercurique  
(HgI<sub>2</sub>).**

**Soutenue le 30 juin 1999**

*Rapporteurs :*

**M. J. JOSEPH** Professeur, Ecole Centrale de Lyon  
**M. J. P. PONPON** Directeur de Recherches au CNRS, Université L. PASTEUR, Strasbourg

*Examineurs :*

**M. M. CERTIER** Professeur, Université de Metz  
**M. J. G. GASSER** Professeur, Université de Metz  
**M. M. SIESKIND** Professeur, Université L. PASTEUR, Strasbourg  
**M. L. JOHANN** Maître de Conférences, Université de Metz

*Directeur de thèse :*

**M. R. KLEIM** Professeur, Université de Metz

BIBLIOTHEQUE UNIVERSITAIRE DE METZ



022 304514 5

## REMERCIEMENTS

*Le travail présenté dans ce mémoire de thèse a été réalisé au sein du groupe Optique du Laboratoire de Physique des Liquides et des Interface (LPLI). Je voudrais exprimer ma sincère gratitude à Monsieur le Professeur J.G. Gasser, Directeur du LPLI, pour la confiance qu'il m'a témoignée en m'acceptant dans son laboratoire et pour avoir accepté de participer à ce jury de thèse.*

*Je tiens ici à exprimer toute ma reconnaissance à Monsieur le Professeur R. Kleim, pour ses grandes qualités humaines et sa rigueur. En tant que directeur de thèse, je le remercie pour l'aide constante et le soutien qu'il m'a apporté en me faisant profiter de ses compétences et de son enthousiasme.*

*Je tiens aussi à remercier chaleureusement Monsieur L. Johann, Maître de conférences à l'Université de Metz, qui a orienté mes recherches et accepté la responsabilité de codiriger mes travaux. Il m'a constamment prodigué ses encouragements amicaux et ses conseils éclairés lors de très nombreuses discussions : qu'il veuille bien trouver ici l'expression de ma plus vive reconnaissance.*

*Je tiens également à adresser mes plus sincères remerciements à Monsieur J. Joseph Professeur à l'École Centrale de Lyon et Monsieur J.P. Ponpon, Directeur de recherches au CNRS du laboratoire de Physique et Application des Semi-conducteurs de l'Université L. Pasteur de Strasbourg, pour avoir accepté la lourde tâche d'être les rapporteurs de ce travail. Qu'ils soient ici assurés de ma profonde reconnaissance.*

*Je suis très honoré de l'intérêt que Monsieur M. Sieskind, Professeur à l'Université L. Pasteur de Strasbourg, a porté à ce travail durant toutes ces étapes. Il m'a fait bénéficier de ses remarques judicieuses et ses interprétations physiques, et accepté de participer à ce jury. Qu'il veuille bien trouver ici l'expression de mes remerciements.*

*J'exprime aussi toute ma reconnaissance à Monsieur le Professeur M. Certier, d'avoir accepté de juger ce travail.*

*J'adresse mes plus vifs remerciements à l'ensemble du personnel du laboratoire PHASE, en particulier Madame M. Amann qui a préparé tous les échantillons utilisés dans ce mémoire.*

*Je souhaite très vivement apporter l'assurance de ma sympathie et de reconnaissance aux personnes du laboratoire LPLI qui, par leur aide précieuse, m'ont donné un soutien inestimable; en particulier :*



*Monsieur C. Louis, Ingénieur à la société ISA-Jobin-Yvon. Monsieur M. D'Amore, ingénieur à la société SOLLAC. Monsieur L. Broch, ingénieur d'étude au laboratoire LPLI. Sans oublier le jeune stagiaire F. Alessandroni.*

*Je remercie également les Docteurs N. Stein et A. El Ghemmaz pour leur conseils et leurs encouragements.*

*Je remercie mes amis étudiants du IPCM que j'ai cotoyé durant le DEA et cette thèse et qui ont su rendre ces années aussi agréables qu'enrichissantes, O. Bengone, J. Bouchet, M. Bensalah, B. Szafran, M. Rommelfangen, J. Vautrin, M. Grin, L. Koutti...*

*Enfin, j'exprime ma plus profonde gratitude à ma famille et à Myriam pour leur patience et leur soutien.*

# Introduction

L'ellipsométrie est une technique optique de caractérisation des matériaux. Elle est basée sur la mesure de la variation de l'état de polarisation de la lumière après réflexion, en incidence oblique sur la surface d'un échantillon. Bien que son principe soit connu depuis plus de cent ans [1], c'est surtout ces vingt dernières années, avec l'apparition d'ellipsomètres spectroscopiques automatiques de grande précision [2], que son utilisation s'est généralisée, en particulier dans le monde de la micro-électronique.

L'ellipsométrie est largement mise en oeuvre pour la caractérisation des milieux isotropes. On peut citer :

- les mesures des constantes optiques des matériaux;
- les mesures d'épaisseur de couches ultra minces (inférieure à 10 nm) et de couches plus épaisses (plusieurs micromètres) telles que les couches antireflets, couches d'or, de silice ou de silicium dans les circuits intégrés;
- le suivi in situ et en temps réel de l'évolution de l'épaisseur d'une couche.
- la caractérisation des interfaces liquide-solide ou liquide-liquide;
- l'analyse des couches de protection (électro-déposition, dépôt plasma, polymères), traitement de surface par recuit (application dans la métallurgie).

Cependant cette technique est comparativement très peu utilisée pour la caractérisation des milieux anisotropes, malgré leur intérêt accru dans plusieurs domaines. De plus, l'apparition de certaines nouvelles technologies [3, 4, 5] a renforcé la nécessité de comprendre les phénomènes optiques aux interfaces des milieux anisotropes. Les travaux réalisés dans ce domaine sont limités à la collection et l'analyse qualitative des données. Les difficultés

principales, sont dues à la non diagonalité de la matrice de Jones de l'échantillon, la complexité des formules associées aux systèmes anisotropes et le nombre élevé des paramètres inconnus. Parmi ces paramètres, les orientations des axes optiques et les indices de réfraction complexes (trois pour un milieu biaxe et deux pour un milieu uniaxe). La mise au point de procédures permettant la mesure des paramètres ellipsométriques des milieux anisotropes et l'inversion des équations ellipsométriques sont des problèmes encore plus délicats.

Récemment, l'analyse des substrats et des structures multicouches anisotropes par réflexion et transmission a connu un véritable essor avec le développement de certaines techniques basées sur le formalisme des matrices  $4 \times 4$  proposé en deux versions différentes respectivement par Berreman [6] et Yeh [7]. Ces méthodes s'appliquent dans le cas le plus général, mais dès que la configuration de mesure se retrouve dans une situation particulière (par exemple le plan d'incidence contenant l'axe optique), ces formalismes divergent et deviennent invalides. En 1996, Schubert [8] a donné un excellent exposé de la technique des matrices  $4 \times 4$  ainsi qu'un algorithme non linéaire permettant l'analyse des milieux anisotropes arbitraires y compris les configurations particulières et les systèmes multicouches homogènes. L'inconvénient de ces formalismes est qu'ils sont difficiles à programmer et peuvent conduire à des temps de calcul importants dans le cas de structures complexes.

Dans notre laboratoire (LPLI), un ellipsomètre spectroscopique à polariseur tournant, comportant un polariseur fixe devant la source, a été développé par le professeur R. Kleim et son équipe à partir d'éléments fournis par la société SOPRA. Cet ellipsomètre à angle d'incidence variable a été baptisé PRPSE (Polarizer, Rotating-Polarizer Spectroscopic Ellipsometer). Ce dispositif a permis de réaliser plusieurs travaux, en particulier, l'étude des propriétés optiques des métaux liquides, notamment l'étain, le plomb et l'alliage étain-plomb [9] et la mesure de la réactivité de métaux, par exemple la croissance de films de sulfate de plomb et d'heptanoate de cuivre [10, 11, 12].

Le but de cette thèse consiste à adapter l'ellipsomètre PRPSE à la mesure des milieux anisotropes et d'appliquer cette technique à l'étude des propriétés optiques d'un substrat anisotrope uniaxe  $\text{HgI}_2$ .

Le premier chapitre de ce mémoire est consacré à la propagation des ondes dans les milieux anisotropes. On montre comment la théorie électromagnétique des milieux anisotropes permet d'interpréter la biréfringence observée dans ces milieux.

Les coefficients de réflexion de Fresnel d'un matériau anisotrope dépendent de l'angle d'incidence et aussi de l'orientation de l'échantillon. Dans le second chapitre nous présentons d'abord la méthode de calcul des coefficients de réflexion dans un milieu anisotrope uniaxe arbitraire, puis nous nous intéressons aux orientations particulières de l'axe optique par rapport à la surface du matériau et au plan d'incidence. Pour le cas où l'axe optique est parallèle à la surface, le travail de Yeh [13] sur le calcul des coefficients de réflexion a été repris et généralisé à l'incidence oblique.

Le principe de l'ellipsométrie est décrit au chapitre 3, ainsi que la description des principaux dispositifs existants avec leurs limitations. Dans ce chapitre, une étude originale a été menée sur les relations entre les paramètres mesurés (les angles ellipsométriques) et les indices optiques d'un matériau anisotrope uniaxe. À partir de cette étude, un algorithme permettant d'extraire les indices de réfraction complexes ordinaire et extraordinaire a été réalisé.

Le dernier paragraphe de ce chapitre est consacré à une description complète de l'ellipsomètre spectroscopique à polariseur tournant à trois éléments (PRPSE).

Deux études consacrées aux mesures d'indices de réfraction complexes de l'iodure mercurique  $\text{HgI}_2$  font l'objet des deux derniers chapitres. La première étude a été réalisée par ellipsométrie conventionnelle sur des échantillons de  $\text{HgI}_2$  dont l'axe optique est perpendiculaire à la surface et d'autres avec l'axe optique parallèle à cette surface. La deuxième étude porte sur des mesures d'indices par ellipsométrie généralisée. Dans ce cas, nous complétons le travail mené au chapitre trois, en donnant les bases théoriques et expérimentales de la configuration généralisée du PRPSE. Nous présentons l'expression du flux lumineux en fonction des coefficients de Fourier dans le cas où l'échantillon est anisotrope possédant la matrice de réflexion non diagonale. Nous montrons ensuite l'efficacité de l'ellipsométrie pour repérer l'axe optique d'un substrat anisotrope uniaxe.

Nous notons que l'analyse de  $\text{HgI}_2$  par ellispométrie s'inscrit dans le cadre d'une collaboration avec Monsieur M. Sieskind, Professeur du laboratoire de Physique et Application des Semi-conducteurs au Centre de Recherches Nucléaires de Strasbourg, UPR du CNRS n° 292.

L'iodure mercurique est un matériau anisotrope combinant à la fois un  $Z$  élevé (80 pour Hg et 53 pour I) et une large bande interdite (2,13 eV). En raison d'une section de capture photoélectrique élevée ( $Z=80$ ), la probabilité d'interaction des rayons gamma de faible énergie est plus élevée, d'un facteur 100, que dans le germanium. La large bande interdite permet des opérations à température ambiante sans générer des bruits thermiques excessifs.

À température ambiante la variété  $\alpha\text{-HgI}_2$  est utilisée dans la fabrication de détecteurs de rayonnements nucléaires. Les premiers compteurs de rayons  $\gamma$ , préparés à base de cette variété, ont été réalisés par Chepur et Petrusevich en 1955 [14]. En 1971, des travaux de Willig [15] ont été entrepris en vue de la fabrication de spectromètre  $\gamma$  à partir de ce matériau. Depuis, de nombreux travaux ont été effectués pour la fabrication de monocristaux de  $\text{HgI}_2$  et la réalisation de spectromètres des rayons X et  $\gamma$ . Les émulsions photographiques, photo-thermographiques et les photoconducteurs électrographiques contiennent souvent du  $\text{HgI}_2$  [16].

L'emploi à la température ambiante rend les détecteurs fabriqués à partir de  $\text{HgI}_2$  intéressants dans de nombreux domaines : réacteurs nucléaires, contrôle de  $^{239}\text{Pu}$  dans les combustibles nucléaires, instrumentation spatiale, médecine (diagnostic ou radiothérapie) [17]. De plus ils possèdent une bonne résolution en énergie.

Les indices de ce matériau ont été très peu étudiés jusqu'à présent. En 1930, Merwin [18] donne les indices de réfraction ordinaire et extraordinaire de  $\text{HgI}_2$  à la température  $20^\circ\text{C}$  dans un domaine de longueurs d'onde trop restreint (entre 0,58 et 0,65  $\mu\text{m}$ ). En 1960, des recherches quantitatives sur les spectres cannelés observés par réflexion, ont permis à Sieskind [19] de mesurer les indices de réfraction des variétés rouge et orangée de  $\text{HgI}_2$  aux températures  $20^\circ\text{C}$  et  $77^\circ\text{K}$ . En utilisant la méthode d'ellipsométrie, Anedda *et coll.* en 1977 sont les premiers à tenter la mesure de la partie imaginaire de la constante diélectrique de

---

$\text{HgI}_2$  [20]. Malheureusement, leurs résultats ne tiennent pas compte de l'anisotropie de  $\text{HgI}_2$ . Récemment, Yao *et coll.* ont utilisé un ellipsomètre spectroscopique à angle variable VASE pour mesurer les propriétés optiques anisotropes de  $\text{HgI}_2$  [21]. Leurs mesures ont été réalisées sur des échantillons traités avec une solution de l'iodure de potassium KI. Or cette attaque chimique a une forte influence sur les propriétés optiques de  $\text{HgI}_2$ .

Il convient donc d'approfondir le sujet et de réaliser de nouvelles mesures. Nous donnons la procédure permettant d'obtenir les indices (de réfraction et d'absorption) ordinaire et extraordinaire de  $\text{HgI}_2$  et les résultats obtenus sur des échantillons massifs de  $\text{HgI}_2$  n'ayant jamais été traités ni découpés par l'iodure de potassium KI, et d'autres sur des échantillons traités avec une solution diluée de KI. Nous montrons en particulier l'importance que revêt la préparation des substrats, le choix de l'angle d'incidence et l'angle azimutal entre l'axe optique et le plan d'incidence.



# Table des matières

|          |   |           |
|----------|---|-----------|
| <b>1</b> | <b>Propagation de la lumière dans un milieu diélectrique anisotrope</b>                                 | <b>11</b> |
| 1.1      | Introduction . . . . .  | 11        |
| 1.2      | Théorie électromagnétique des milieux anisotropes . . . . .   | 12        |
| 1.2.1    | Les équations de Maxwell . . . . .  | 12        |
| 1.2.2    | Propagation d'une onde monochromatique dans un milieu anisotrope.                                       | 14        |
| 1.3      | Équation de Fresnel. . . . .  | 15        |
| 1.4      | Équation aux indices . . . . .  | 18        |
| 1.5      | Surface des indices . . . . .   | 19        |
| 1.5.1    | Axes optiques d'un milieu anisotrope biaxe . . . . .  | 21        |
| 1.6      | Ellipsoïde des indices . . . . .  | 21        |
| 1.7      | Propagation d'une onde dans un milieu anisotrope uniaxe . . . . .                                       | 23        |
| 1.7.1    | Ellipsoïde des indices d'un milieu uniaxe . . . . .   | 24        |
| 1.7.2    | Équation de Fresnel . . . . .   | 25        |
| 1.8      | Conclusion du premier chapitre . . . . .  | 26        |
| <b>2</b> | <b>Réflexion et réfraction dans un milieu anisotrope uniaxe</b>   | <b>27</b> |
| 2.1      | Axe optique orienté arbitrairement par rapport à la surface du cristal et au plan d'incidence . . . . . | 27        |
| 2.1.1    | Représentation . . . . .  | 27        |
| 2.1.2    | Propagation de la lumière dans un milieu anisotrope . . . . .   | 28        |
| 2.1.3    | Tenseur de permittivité dans un milieu anisotrope . . . . .   | 29        |
| 2.2      | Les modes normaux dans un cristal uniaxe . . . . .  | 31        |
| 2.3      | Coefficients de réflexion . . . . .   | 34        |



|          |  |           |
|----------|--|-----------|
| 2.3.1    | Onde type S . . . . .  | 34        |
| 2.3.2    | Onde type P . . . . .  | 35        |
| 2.4      | Étude des cas particuliers . . . . .   | 37        |
| 2.4.1    | Limite isotrope . . . . .  | 37        |
| 2.4.2    | Axe optique perpendiculaire à l'interface . . . . .  | 38        |
| 2.4.3    | Axe optique parallèle à l'interface . . . . .  | 39        |
| 2.5      | Conclusion du second chapitre . . . . .  | 44        |
| <b>3</b> | <b>Ellipsométrie</b> . . . . .   | <b>45</b> |
| 3.1      | Polarisation de la lumière . . . . .   | 45        |
| 3.2      | État de polarisation d'une onde plane . . . . .  | 46        |
| 3.2.1    | Polarisation circulaire . . . . .  | 48        |
| 3.2.2    | Polarisation rectiligne . . . . .  | 48        |
| 3.3      | Représentation matricielle de l'état de polarisation . . . . .   | 49        |
| 3.3.1    | Vecteurs de Jones d'une lumière elliptique . . . . .   | 49        |
| 3.3.2    | Matrice de transfert d'un système optique . . . . .  | 50        |
| 3.3.3    | Vecteur de Stokes . . . . .  | 51        |
| 3.3.4    | Matrice de Mueller d'un système optique . . . . .  | 51        |
| 3.4      | Principes de l'ellipsométrie conventionnelle . . . . .   | 53        |
| 3.5      | L'ellipsométrie généralisée . . . . .  | 55        |
| 3.6      | Les différentes techniques de mesure . . . . .   | 58        |
| 3.6.1    | L'ellipsométrie à annulation . . . . .   | 58        |
| 3.6.2    | L'ellipsomètre à modulateur de phase . . . . .   | 59        |
| 3.6.3    | Les ellipsomètres photométriques à élément tournant . . . . .  | 59        |
| 3.7      | Exploitation des angles ellipsométriques . . . . .   | 62        |
| 3.7.1    | Introduction . . . . .   | 62        |
| 3.7.2    | Relations entre les angles ellipsométriques et les constantes optiques<br>dans un milieu anisotrope uniaxe . . . . . | 62        |
| 3.8      | Exemples de simulation des angles ellipsométriques . . . . .   | 63        |
| 3.8.1    | Variation de l'angle d'incidence . . . . .   | 63        |
| 3.8.2    | Variation de l'angle azimutal . . . . .  | 64        |
| 3.9      | Méthodes de calcul numérique . . . . .   | 67        |

|          |  |            |
|----------|--|------------|
| 3.10     | Présentation de l'ellipsomètre à polariseur tournant à trois éléments . . . . .                            | 70         |
| 3.10.1   | Introduction . . . . .   | 70         |
| 3.10.2   | Description du montage PRPSE . . . . .   | 70         |
| 3.11     | Expression du flux lumineux . . . . .  | 72         |
| 3.11.1   | Introduction . . . . .   | 72         |
| 3.11.2   | Échantillon isotrope ou anisotrope avec la matrice de réflexion diagonale                                  | 73         |
| 3.11.3   | Calcul des angles ellipsométriques . . . . .   | 76         |
| 3.12     | Calibrage de l'ellipsomètre . . . . .  | 77         |
| 3.13     | Erreurs systématiques . . . . .  | 78         |
| 3.13.1   | La mesure double-zone . . . . .  | 78         |
| 3.14     | Conclusion du troisième chapitre . . . . .   | 79         |
| <b>4</b> | <b>Étude des propriétés optiques de la variété rouge de HgI<sub>2</sub></b>                                | <b>81</b>  |
| 4.1      | Introduction . . . . .   | 81         |
| 4.2      | Préparation des monocristaux . . . . .   | 82         |
| 4.3      | Structure cristalline de la variété $\alpha$ -HgI <sub>2</sub> . . . . .                                   | 82         |
| 4.4      | Structure de bande de HgI <sub>2</sub> . . . . .   | 83         |
| 4.5      | Propriétés semiconductrices de $\alpha$ -HgI <sub>2</sub> . . . . .  | 86         |
| 4.6      | Propriétés physico-chimiques de HgI <sub>2</sub> . . . . .   | 87         |
| 4.7      | Caractérisation de HgI <sub>2</sub> par ellipsométrie spectroscopique conventionnelle . .                  | 89         |
| 4.7.1    | Introduction . . . . .   | 89         |
| 4.7.2    | Axe optique de HgI <sub>2</sub> perpendiculaire à la surface . . . . .                                     | 90         |
| 4.7.3    | Axe optique de HgI <sub>2</sub> parallèle à la surface . . . . .   | 93         |
| 4.7.4    | Mise en évidence de la pollution progressive de la surface . . . . .                                       | 104        |
| 4.8      | Caractérisation de surfaces de HgI <sub>2</sub> traitées avec une solution d'iodure de potassium . . . . . | 111        |
| 4.8.1    | Confirmation de la présence du complexe KHgI <sub>3</sub> dans la littérature . .                          | 111        |
| 4.8.2    | Caractérisation du complexe KHgI <sub>3</sub> formé sur la surface . . . . .                               | 113        |
| 4.9      | Conclusion du quatrième chapitre . . . . .   | 120        |
| <b>5</b> | <b>Caractérisation de HgI<sub>2</sub> par ellipsométrie généralisée</b>                                    | <b>121</b> |



|          |  |            |
|----------|--|------------|
| 5.1      | Extension de PRPSE à l'ellipsométrie généralisée . . . . .   | 121        |
| 5.1.1    | Expression du flux : échantillon anisotrope avec la matrice de Jones de réflexion non diagonale . . . . .  | 121        |
| 5.1.2    | Présentation du problème . . . . .   | 124        |
| 5.1.3    | Développement expérimental . . . . .   | 126        |
| 5.2      | Détermination des constantes optiques de $\text{HgI}_2$ par la méthode PRPSE généralisée . . . . .         | 127        |
| 5.2.1    | Vérification de la reproductibilité des résultats . . . . .  | 132        |
| 5.2.2    | Comparaison avec les indices obtenus par l'ellipsométrie conventionnelle                                   | 133        |
| 5.2.3    | Détermination de l'orientation de l'échantillon . . . . .  | 133        |
| 5.3      | Détermination des angles ellipsométriques généralisée . . . . .  | 137        |
| 5.4      | Conclusion du cinquième chapitre . . . . .   | 141        |
|          | <b>Conclusion générale</b>   | <b>143</b> |
| <b>A</b> | <b>Mesure des coefficients <math>h_i</math> : méthode de Hadamard</b>                                      | <b>147</b> |
| <b>B</b> | <b>Relations entre les angles ellipsométriques et les constantes optiques</b>                              | <b>149</b> |
| B.1      | Axe optique perpendiculaire à l'interface . . . . .  | 149        |
| B.2      | Axe optique parallèle à la surface . . . . .   | 150        |
| B.2.1    | Axe optique parallèle à l'interface et au plan d'incidence ( $\phi = 0^\circ$ ) . . . . .                  | 153        |
| B.2.2    | Axe optique parallèle à l'interface et perpendiculaire au plan d'incidence ( $\phi = 90^\circ$ ) . . . . . | 154        |

# Chapitre 1

## Propagation de la lumière dans un milieu diélectrique anisotrope

### 1.1 Introduction

Dans un milieu anisotrope les propriétés optiques, et en particulier l'indice de réfraction, diffèrent suivant la direction de propagation [22]. En fait, pour une direction de propagation fixée, on montre qu'il existe deux indices de réfraction possibles et à chacun d'eux correspond une direction parfaitement déterminée de la vibration transportée. Ces indices sont associés à des ondes électromagnétiques ayant des états de polarisation qui peuvent se propager sans altération.

Dans un milieu diélectrique anisotrope, le vecteur induction électrique ( $\vec{D}$ ) et le vecteur champ électrique ( $\vec{E}$ ) ne sont pas colinéaires. La relation entre  $\vec{D}$  et  $\vec{E}$  est donnée par  $\vec{D} = \varepsilon \vec{E}$ , mais la permittivité  $\varepsilon$  est un tenseur. Chaque composante de  $\vec{D}$  est une fonction linéaire des trois composantes de  $\vec{E}$  [23] :

$$\begin{pmatrix} D_x \\ D_y \\ D_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \varepsilon_{xx} & \varepsilon_{xy} & \varepsilon_{xz} \\ \varepsilon_{yx} & \varepsilon_{yy} & \varepsilon_{yz} \\ \varepsilon_{zx} & \varepsilon_{zy} & \varepsilon_{zz} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix}.$$

Soit  $D_i = \sum_j \varepsilon_{ij} E_j$  avec  $(i, j = x, y, z)$ .

Le tenseur  $\varepsilon$  est symétrique :

$$\varepsilon_{xy} = \varepsilon_{yx} \qquad \varepsilon_{zy} = \varepsilon_{yz} \qquad \varepsilon_{xz} = \varepsilon_{zx}.$$

Les neuf composantes indépendantes se réduisent ainsi à six. Au moyen d'un changement d'axes il est possible de transformer un tenseur symétrique en un tenseur diagonal [22]. Le

système de coordonnées correspondant est appelé le repère propre du matériau, les axes de ce repère sont dits les axes principaux du milieu ou axes de symétrie électriques du milieu.

Soit  $(O, \vec{e}_x, \vec{e}_y, \vec{e}_z)$  le repère propre du milieu, on a les relations suivantes:

$$D_x = \varepsilon_{xx}E_x = \varepsilon_x E_x \quad D_y = \varepsilon_{yy}E_y = \varepsilon_y E_y \quad D_z = \varepsilon_{zz}E_z = \varepsilon_z E_z.$$

Les constantes  $\varepsilon_x$ ,  $\varepsilon_y$  et  $\varepsilon_z$  s'appellent les constantes diélectriques principales. Lorsque  $\vec{E}$  est dirigé suivant l'un des axes principaux, l'induction électrique lui est parallèle, mais dans tous les autres cas, les deux vecteurs champ et induction ont des directions différentes.

Sous forme matricielle, on peut écrire :

$$\begin{pmatrix} D_x \\ D_y \\ D_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \varepsilon_x & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_y & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_z \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix}.$$

Classiquement, on distingue deux types de milieux optiques anisotropes classés suivant la forme du tenseur permittivité  $\varepsilon$  [24] :

- milieu biaxe:  $\varepsilon_{xx} \neq \varepsilon_{yy} \neq \varepsilon_{zz}$

Ce milieu est caractérisé par deux axes optiques.

- milieu uniaxe:  $\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy} \neq \varepsilon_{zz}$

Ce milieu a un seul axe optique, d'où son nom.

Dans notre cas, nous désignons brièvement par 'milieu anisotrope' un milieu non conducteur (la conductivité  $\sigma = 0$ ), magnétiquement isotrope (la perméabilité  $\mu$  est une grandeur scalaire) et électriquement anisotrope (la permittivité  $\varepsilon$  est tensorielle).

## 1.2 Théorie électromagnétique des milieux anisotropes

### 1.2.1 Les équations de Maxwell

Les équations de Maxwell sont l'expression des lois générales de l'électromagnétisme[24]:

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}, \quad (1.1)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{D} = \rho, \quad (1.2)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0, \quad (1.3)$$

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{H} = \vec{j} + \frac{\partial \vec{D}}{\partial t}. \quad (1.4)$$

Les vecteurs  $\vec{j}$ ,  $\vec{B}$  et  $\vec{H}$  représentent respectivement la densité de courant, le vecteur induction magnétique et le vecteur champ magnétique. Ces équations sont indépendantes de la nature du milieu [25]. Les vecteurs  $\vec{E}$ ,  $\vec{D}$ ,  $\vec{B}$ ,  $\vec{H}$  et  $\vec{j}$  sont reliés par les relations suivantes

$$\vec{j} = \sigma \vec{E} \quad \vec{D} = \varepsilon \vec{E} \quad \vec{B} = \mu \vec{H},$$

où :  $\sigma, \varepsilon, \mu$  représentent respectivement la conductivité (en  $(\Omega m)^{-1}$ ), la permittivité (ou constante diélectrique, en farads par mètre) et la perméabilité (en henrys par mètre). Ces relations dites "constitutives" dépendent des propriétés du milieu. Les quantités  $\sigma, \varepsilon, \mu$  sont des scalaires dans le cas d'un milieu isotrope, et lorsque l'une de ces quantités est tensorielle, le matériau est anisotrope. Nous considérons que les milieux sont non chargés ( $\rho = 0$ ), non conducteurs (la conductivité  $\sigma = 0$ ) et magnétiquement isotropes. Les équations de Maxwell à appliquer sont donc :

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{E} = -\mu \frac{\partial \vec{H}}{\partial t}, \quad (1.5)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{D} = 0, \quad (1.6)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{H} = 0, \quad (1.7)$$

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{H} = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t}. \quad (1.8)$$

Ces équations sont la base de l'étude de la propagation des ondes électromagnétiques dans un milieu diélectrique. La différence fondamentale avec les équations utilisées dans le cas des milieux isotropes est :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{D} = 0 \quad \text{mais} \quad \vec{\nabla} \cdot \vec{E} \neq 0,$$

c'est-à-dire :

$$\frac{\partial D_x}{\partial x} + \frac{\partial D_y}{\partial y} + \frac{\partial D_z}{\partial z} = 0 \quad \text{et} \quad \frac{1}{\varepsilon_x} \frac{\partial D_x}{\partial x} + \frac{1}{\varepsilon_y} \frac{\partial D_y}{\partial y} + \frac{1}{\varepsilon_z} \frac{\partial D_z}{\partial z} \neq 0$$

### 1.2.2 Propagation d'une onde monochromatique dans un milieu anisotrope.

Soit une onde plane monochromatique se propageant dans une direction quelconque, de vecteur unitaire  $\vec{s}$ . Les vecteurs  $\vec{E}$ ,  $\vec{D}$ ,  $\vec{B}$  et  $\vec{H}$  s'écrivent sous la forme :

$$\vec{E} = \vec{E}_o \exp i(\omega t - \vec{K} \cdot \vec{r}), \quad (1.9)$$

$$\vec{D} = \vec{D}_o \exp i(\omega t - \vec{K} \cdot \vec{r}), \quad (1.10)$$

$$\vec{B} = \vec{B}_o \exp i(\omega t - \vec{K} \cdot \vec{r}), \quad (1.11)$$

$$\vec{H} = \vec{H}_o \exp i(\omega t - \vec{K} \cdot \vec{r}), \quad (1.12)$$

$\vec{K} = \frac{\omega}{V} \vec{s}$ ,  $\omega$  étant la fréquence angulaire et  $V$  la vitesse de phase ou la vitesse normale.

Les quatre équations de Maxwell deviennent alors :

$$\frac{\vec{s}}{V} \wedge \vec{E} = \mu\omega \vec{H}, \quad (1.13)$$

$$\vec{s} \cdot \vec{D} = 0, \quad (1.14)$$

$$\vec{s} \cdot \vec{H} = 0, \quad (1.15)$$

$$\frac{\vec{s}}{V} \wedge \vec{H} = -\omega \vec{D}. \quad (1.16)$$

Les équations (1.14) et (1.15) établissent la transversalité des vecteurs  $\vec{D}$  et  $\vec{H}$ . Ces deux vecteurs sont perpendiculaires à la direction de propagation et sont donc dans le plan d'onde.

Les équations (1.13) et (1.16) montrent que les vecteurs  $\vec{D}$ ,  $\vec{H}$  et  $\vec{s}$  forment un trièdre direct (figure 1.1).

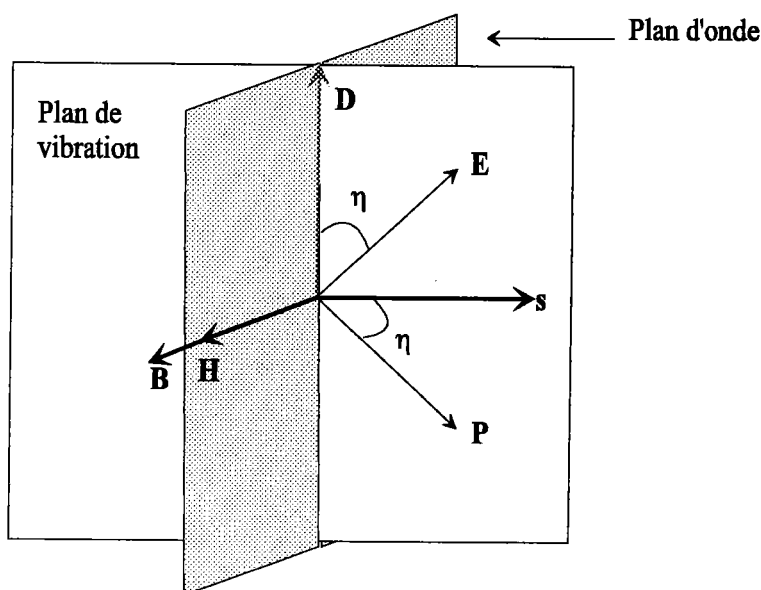
La direction de propagation de l'énergie est donnée par le vecteur de *Poynting* :  $\vec{P} = \vec{E} \wedge \vec{H}$  [22].

Le plan défini par  $\vec{D}$  et  $\vec{H}$ , perpendiculaire à  $\vec{s}$ , est le plan d'onde.

Le plan  $(\vec{D}, \vec{s})$  normal au plan d'onde et contenant la vibration s'appelle le plan de vibration. Il contient le vecteur de Poynting et le champ électrique, et est normal au champ magnétique.

L'angle  $\eta$  entre ce plan et le rayon lumineux  $\vec{P}$  est égal à l'angle entre le champ électrique et le plan d'onde.





**Figure 1.1:** Définition des plans d'onde et de vibration. Disposition relative des vecteurs ( $\vec{E}$ ,  $\vec{H}$ ,  $\vec{D}$ ,  $\vec{B}$ ,  $\vec{P}$ ,  $\vec{s}$ ) dans un milieu anisotrope.

La figure(1.1) indique les positions relatives des différents vecteurs  $\vec{E}$ ,  $\vec{D}$ ,  $\vec{H}$ ,  $\vec{P}$  et  $\vec{s}$ .

Remarquons que le vecteur de *Poynting* qui traduit la direction du flux d'énergie (donc du rayon lumineux), n'est pas parallèle au vecteur de la direction de propagation( $\vec{s}$ ) de l'onde. On trouve ainsi une différence fondamentale avec la propagation de la lumière dans les milieux isotropes, milieux dans lesquels la direction de propagation de l'onde et de l'énergie sont confondues.

Afin de conserver la transversalité des vibrations dans un milieu anisotrope, on préfère identifier la vibration lumineuse au vecteur  $\vec{D}$  plutôt qu'au vecteur  $\vec{E}$  [24].

On rappelle qu'une onde est transversale lorsque le vecteur qui représente cette onde est situé dans le plan d'onde.

### 1.3 Équation de Fresnel.

Quelle que soit la fonction vectorielle  $\vec{E}$ , on a l'identité suivant [25] :

$$\vec{\nabla} \wedge (\vec{\nabla} \wedge \vec{E}) = \overrightarrow{grad}(div \vec{E}) - \Delta \vec{E}.$$

En éliminant le champ magnétique  $\vec{H}$  entre les deux équations du paragraphe précédent :

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{E} = -\mu \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} \qquad \vec{\nabla} \wedge \vec{H} = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t},$$

on obtient :

$$\vec{\nabla} \wedge (\vec{\nabla} \wedge \vec{E}) = -\mu \frac{\partial^2 \vec{D}}{\partial t^2}.$$

On a donc :

$$-\Delta \vec{E} + \overrightarrow{\text{grad}}(\text{div} \vec{E}) = -\mu \frac{\partial^2 \vec{D}}{\partial t^2}.$$

Projetons cette relation sur les axes principaux (O,  $\vec{e}_x$ ,  $\vec{e}_y$ ,  $\vec{e}_z$ ) :

$$\frac{\partial^2 E_x}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 E_x}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 E_x}{\partial z^2} - \frac{\partial}{\partial x} \left( \frac{\partial E_x}{\partial x} + \frac{\partial E_y}{\partial y} + \frac{\partial E_z}{\partial z} \right) = \mu \frac{\partial^2 D_x}{\partial t^2}, \quad (1.17)$$

$$\frac{\partial^2 E_y}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 E_y}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 E_y}{\partial z^2} - \frac{\partial}{\partial y} \left( \frac{\partial E_x}{\partial x} + \frac{\partial E_y}{\partial y} + \frac{\partial E_z}{\partial z} \right) = \mu \frac{\partial^2 D_y}{\partial t^2}, \quad (1.18)$$

$$\frac{\partial^2 E_z}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 E_z}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 E_z}{\partial z^2} - \frac{\partial}{\partial z} \left( \frac{\partial E_x}{\partial x} + \frac{\partial E_y}{\partial y} + \frac{\partial E_z}{\partial z} \right) = \mu \frac{\partial^2 D_z}{\partial t^2}. \quad (1.19)$$

Les vecteurs  $\vec{E}$  et  $\vec{D}$  de l'onde se propageant suivant la direction  $\vec{s}$  sont donnés par :

$$\vec{E} = \vec{E}_o \exp\left\{i\omega\left(t - \frac{\vec{s} \cdot \vec{r}}{v}\right)\right\}, \quad (1.20)$$

$$\vec{D} = \vec{D}_o \exp\left\{i\omega\left(t - \frac{\vec{s} \cdot \vec{r}}{v}\right)\right\}. \quad (1.21)$$

Soit  $\alpha$ ,  $\beta$  et  $\gamma$  les cosinus directeurs de  $\vec{s}$ , le produit scalaire de  $\vec{s}$  et  $\vec{r}$  s'écrit :

$$\vec{s} \cdot \vec{r} = \alpha x + \beta y + \gamma z.$$

En effectuant les dérivations par rapport à x, y et z, les expressions (1.17), (1.18) et (1.19) deviennent :

$$\mu D_x = \frac{1}{v^2} \left( E_x - \alpha (\vec{s} \cdot \vec{E}) \right), \quad (1.22)$$

$$\mu D_y = \frac{1}{v^2} \left( E_y - \beta (\vec{s} \cdot \vec{E}) \right), \quad (1.23)$$

$$\mu D_z = \frac{1}{v^2} \left( E_z - \gamma (\vec{s} \cdot \vec{E}) \right). \quad (1.24)$$

Ces équations sont équivalentes à :

$$\mu \vec{D} = \frac{1}{v^2} \left( \vec{E} - \vec{s} \cdot (\vec{s} \cdot \vec{E}) \right). \quad (1.25)$$

Exprimons les composantes du vecteur champ électrique  $\vec{E}$  en fonction de celles du vecteur induction électrique  $\vec{D}$  dans le repère propre  $(O, \vec{e}_x, \vec{e}_y, \vec{e}_z)$

$$D_x = \varepsilon_x E_x \quad D_y = \varepsilon_y E_y \quad D_z = \varepsilon_z E_z.$$

Si on introduit les carrés des vitesses :

$$V_x^2 = \frac{1}{\varepsilon_x \mu} \quad V_y^2 = \frac{1}{\varepsilon_y \mu} \quad V_z^2 = \frac{1}{\varepsilon_z \mu} \quad V^2 = \frac{\omega^2}{K^2}$$

$V_x$ ,  $V_y$  et  $V_z$  sont les vitesses principales de propagation des ondes suivant les trois axes principaux,  $V$  étant la vitesse de propagation dans la direction du vecteur d'onde  $\vec{K}$ .

Les équations (1.22), (1.23) et (1.24) deviennent ainsi :

$$D_x = \frac{\alpha}{(V_x^2 - V^2)} \frac{\vec{s} \cdot \vec{E}}{\mu}, \quad (1.26)$$

$$D_y = \frac{\beta}{(V_y^2 - V^2)} \frac{\vec{s} \cdot \vec{E}}{\mu}, \quad (1.27)$$

$$D_z = \frac{\gamma}{(V_z^2 - V^2)} \frac{\vec{s} \cdot \vec{E}}{\mu}. \quad (1.28)$$

$$(1.29)$$

La transversalité des ondes dans un milieu anisotrope se traduit par :

$$\vec{s} \cdot \vec{D} = \alpha D_x + \beta D_y + \gamma D_z = 0,$$

en substituant les expressions de  $D_x$ ,  $D_y$  et  $D_z$  dans cette équation, on trouve :

$$\frac{\alpha^2}{V^2 - V_x^2} + \frac{\beta^2}{V^2 - V_y^2} + \frac{\gamma^2}{V^2 - V_z^2} = 0. \quad (1.30)$$

C'est l'équation de **Fresnel**. Cette équation permet de calculer la vitesse de propagation dans la direction  $\vec{s}$  en fonction des vitesses principales.

L'équation de **Fresnel** est du deuxième degré en  $V^2$ ; elle a quatre racines réelles, mais seules les deux racines positives nous intéressent, les racines négatives correspondant à l'onde qui se propage en sens inverse [22]. Donc pour une direction donnée  $\vec{s}$ , il existe deux ondes électromagnétiques qui se propagent avec des vitesses différentes  $V'$  et  $V''$  ou de manière équivalente avec des indices différents  $n'$  et  $n''$ . Les deux ondes sont caractérisées par des vecteurs induction électrique  $D'$  et  $D''$  orthogonaux au vecteur  $\vec{s}$  et orthogonaux entre eux.

## 1.4 Équation aux indices

La vitesse est reliée à l'indice par :  $V = \frac{c}{n}$  et de même pour les vitesses principales :

$$V_x = \frac{c}{n_x} \quad V_y = \frac{c}{n_y} \quad V_z = \frac{c}{n_z}$$

L'équation de Fresnel (1.30) devient ainsi :

$$\frac{n_x^2 \alpha^2}{n^2 - n_x^2} + \frac{n_y^2 \beta^2}{n^2 - n_y^2} + \frac{n_z^2 \gamma^2}{n^2 - n_z^2} = 0 \quad (1.31)$$

Cette équation est dite **équation aux indices**. Elle permet de calculer l'indice  $n$  en fonction des cosinus directeurs de la normale au plan d'onde. C'est une équation bicarrée en  $n$ , elle a toujours deux racines positives réelles; elles sont en général distinctes, par exemple si  $n_x > n_y > n_z$ , l'un de ces indices ( $n'$ ) étant compris entre  $n_x$  et  $n_y$ , l'autre ( $n''$ ) étant compris entre  $n_y$  et  $n_z$ .

A un plan d'onde donné correspondent deux indices  $n'$  et  $n''$  différents, donc deux orientations  $\vec{D}'$  et  $\vec{D}''$ . On montre que ces deux directions sont rectangulaires. En effet, calculons le produit scalaire de  $\vec{D}'$  et  $\vec{D}''$  :

$$\vec{D}' \cdot \vec{D}'' = D'_x D''_x + D'_y D''_y + D'_z D''_z$$

d'où

$$\vec{D}' \cdot \vec{D}'' = \frac{(\vec{s} \cdot \vec{E})^2}{\mu^2} \left[ \frac{\alpha^2}{(V'^2 - V_x^2)(V''^2 - V_x^2)} + \frac{\beta^2}{(V'^2 - V_y^2)(V''^2 - V_y^2)} + \frac{\gamma^2}{(V'^2 - V_z^2)(V''^2 - V_z^2)} \right] \quad (1.32)$$

En utilisant un développement en fractions élémentaires, l'équation (1.32) devient :

$$\vec{D}' \cdot \vec{D}'' = \frac{(\vec{s} \cdot \vec{E})^2}{\mu^2 (V'^2 - V''^2)} \left[ \left( \frac{\alpha^2}{V'^2 - V_x^2} + \frac{\beta^2}{V'^2 - V_y^2} + \frac{\gamma^2}{V'^2 - V_z^2} \right) - \left( \frac{\alpha^2}{V''^2 - V_x^2} + \frac{\beta^2}{V''^2 - V_y^2} + \frac{\gamma^2}{V''^2 - V_z^2} \right) \right] \quad (1.33)$$

Les deux termes entre parenthèse qui apparaissent dans cette expression, sont nuls puisqu'ils représentent les éléments composant une équation de Fresnel.

On a donc  $\vec{D}' \cdot \vec{D}'' = 0$ , et les deux orientations  $\vec{D}'$  et  $\vec{D}''$  sont perpendiculaires. Il en résulte que pour une orientation donnée du plan d'onde, il existe dans ce plan deux vibrations rectilignes  $\vec{D}'$  et  $\vec{D}''$  orthogonales. Les directions privilégiées  $\vec{D}'$  et  $\vec{D}''$  conservent donc des

vibrations se propageant sans altération, c'est-à-dire, sans déformation. À ces deux vibrations correspondent deux indices  $n'$  et  $n''$  différents, et par conséquent deux vitesses de propagation  $V' = \frac{c}{n'}$  et  $V'' = \frac{c}{n''}$  différentes. On montre qu' à l'exception de ces deux vibrations dont nous venons d'établir l'existence, tout autre vibration rectiligne se déforme au cours de sa propagation [25].

## 1.5 Surface des indices

Soit  $x$ ,  $y$  et  $z$  les coordonnées d'un point  $N$  dans le repère  $(O, \vec{e}_x, \vec{e}_y, \vec{e}_z)$ , tel que le vecteur  $\vec{ON}$  ait pour longueur l'indice  $n$  et pour cosinus directeurs  $\alpha, \beta$  et  $\gamma$ .

$$x = \alpha n \qquad y = \beta n \qquad z = \gamma n,$$

avec :

$$\alpha^2 + \beta^2 + \gamma^2 = 1 \qquad \text{et} \qquad x^2 + y^2 + z^2 = n^2.$$

En développant l'équation aux indices (1.31) et y remplaçant  $n^2$ ,  $\alpha n$ ,  $\beta n$  et  $\gamma n$  par leurs valeurs, on obtient :

$$(n_x^2 x^2 + n_y^2 y^2 + n_z^2 z^2)(x^2 + y^2 + z^2) - n_x^2 x^2 (n_y^2 + n_z^2) - n_y^2 y^2 (n_x^2 + n_z^2) - n_z^2 z^2 (n_x^2 + n_y^2) + n_x^2 n_y^2 n_z^2 = 0 \quad (1.34)$$

C'est l'équation de la **surface des indices**.

La surface des indices est le lieu géométrique des points construit à partir des variations de l'indice en fonction de l'orientation du plan d'onde [25].

L'étude analytique montre que la surface des indices est une surface à deux nappes, symétrique par rapport aux trois plans de coordonnées. En effet, cherchons les points de cette surface situés sur les axes de coordonnées. Les points sur l'axe  $(O \vec{e}_x)$  correspondent à  $\beta = 0$ ,  $\gamma = 0$  et les solutions de l'équation aux indices sont alors  $n_y$  et  $n_z$ . Les points sur l'axe  $(O \vec{e}_y)$  correspondent à  $\alpha = 0$ ,  $\gamma = 0$  et les solutions de l'équation aux indices sont  $n_x$  et  $n_z$ . Pour les points sur l'axe  $(O \vec{e}_z)$ , les solutions de cette équation sont  $n_x$  et  $n_y$ . Chaque direction de l'axe de coordonnées perce ainsi la surface des indices en deux points dont les distances à l'origine sont des indices principaux correspondant aux deux autres axes.

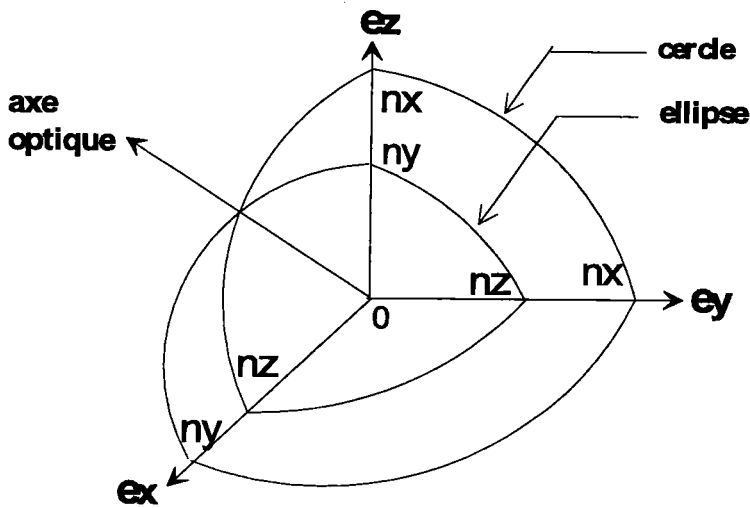


Figure 1.2: Représentation de la surfaces des indices.

Cherchons maintenant l'intersection de la surface des indices avec les plans de coordonnées  $(\vec{e}_x, O, \vec{e}_y)$ ,  $(\vec{e}_x, O, \vec{e}_z)$  et  $(\vec{e}_y, O, \vec{e}_z)$ , pour une direction quelconque de ces plans, on a respectivement  $\gamma = 0, \beta = 0$  et  $\alpha = 0$ . L'équation aux indices (1.31) se décompose ainsi en deux équations : une équation d'un cercle et une équation d'une ellipse .

- Pour le plan  $(\vec{e}_x, O, \vec{e}_y)$

$$x^2 + y^2 = n_z^2 \qquad \frac{x^2}{n_y^2} + \frac{y^2}{n_x^2} = 1$$

- Pour le plan  $(\vec{e}_x, O, \vec{e}_z)$

$$x^2 + z^2 = n_y^2 \qquad \frac{x^2}{n_z^2} + \frac{z^2}{n_x^2} = 1$$

- Pour le plan  $(\vec{e}_y, O, \vec{e}_z)$

$$y^2 + z^2 = n_x^2 \qquad \frac{y^2}{n_z^2} + \frac{z^2}{n_y^2} = 1$$

L'intersection de la surface des indices avec un des plans de symétrie optique se compose d'un cercle, dont le rayon est égal à l'indice principal correspondant à l'axe normal au plan considéré et d'une ellipse, dont chacun des demi-axes est égal à l'indice principal correspondant à l'autre.

### 1.5.1 Axes optiques d'un milieu anisotrope biaxe

Les axes optiques sont déterminés en traçant les intersections de la surface des indices avec les plans de coordonnées. Les intersections des deux nappes définissent avec l'origine deux directions particulières appelées **axes optiques**. Lorsque la propagation a lieu suivant la direction des axes optiques, l'indice n'a qu'une seule valeur.

Sur la figure (1.3), on a tracé la surface des indices à deux dimensions, les deux directions  $OA$  et  $OA'$  sont les axes optiques. Lorsque la propagation a lieu suivant la direction d'un axe optique, l'indice n'a qu'une seule valeur : les deux directions privilégiées  $D'$  et  $D''$  se propagent avec des vitesses égales et puisque la vibration n'introduit aucune différence de phase entre  $D'$  et  $D''$ , une vibration quelconque  $D$  se propage sans altération. Il en résulte que l'état de polarisation initial d'une onde lumineuse dont la normale au plan d'onde coïncide avec un axe optique, est conservé au cours de sa propagation.

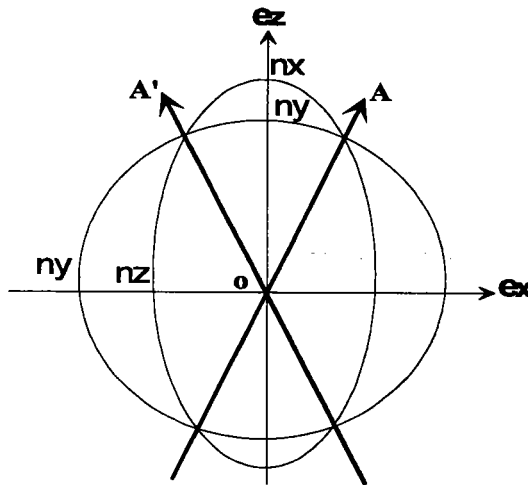


Figure 1.3: Surface des indices à deux dimensions.

## 1.6 Ellipsoïde des indices

Evaluons la contribution des composantes  $\alpha D_x$ ,  $\beta D_y$  et  $\gamma D_z$ .

D'après (1.26), (1.27) et (1.28) :

$$\alpha D_x = (V_x^2 - V^2) D_x \frac{\mu}{\vec{s} \cdot \vec{E}} \quad \beta D_y = (V_y^2 - V^2) D_y \frac{\mu}{\vec{s} \cdot \vec{E}} \quad \gamma D_z = (V_z^2 - V^2) D_z \frac{\mu}{\vec{s} \cdot \vec{E}},$$

donc  $\vec{s} \cdot \vec{D} = 0$  s'écrit :

$$(V_x^2 - V^2)D_x^2 + (V_y^2 - V^2)D_y^2 + (V_z^2 - V^2)D_z^2 = 0 \quad (1.35)$$

après simplification, on obtient:

$$\frac{D_x^2}{n_x^2} + \frac{D_y^2}{n_y^2} + \frac{D_z^2}{n_z^2} = \frac{D^2}{n^2}. \quad (1.36)$$

L'équation (1.36) s'écrit encore:

$$\frac{\left(\frac{D_x^2 n^2}{D^2}\right)}{n_x^2} + \frac{\left(\frac{D_y^2 n^2}{D^2}\right)}{n_y^2} + \frac{\left(\frac{D_z^2 n^2}{D^2}\right)}{n_z^2} = 1, \quad (1.37)$$

où

$$\frac{D^2}{n^2} = \frac{D_x^2 + D_y^2 + D_z^2}{x^2 + y^2 + z^2} = \frac{D_x^2}{x^2} = \frac{D_y^2}{y^2} = \frac{D_z^2}{z^2}. \quad (1.38)$$

Ainsi l'équation (2.20) conduit à la relation suivante:

$$\frac{x^2}{n_x^2} + \frac{y^2}{n_y^2} + \frac{z^2}{n_z^2} = 1. \quad (1.39)$$

C'est l'équation d'une surface ellipsoïdale, dite **ellipsoïde des indices**.

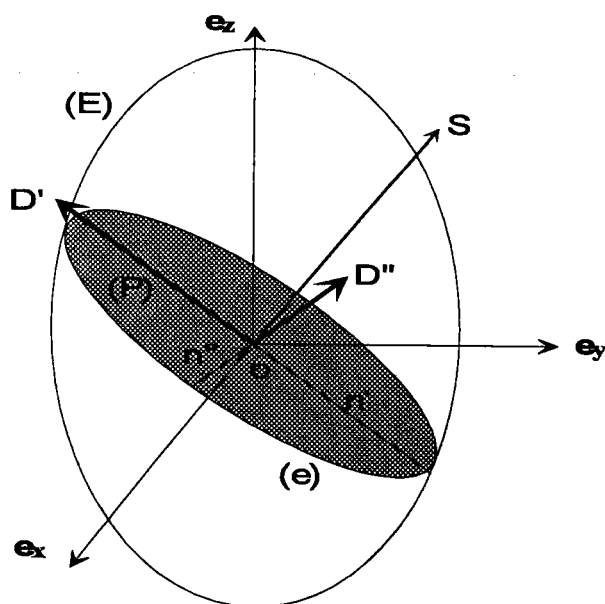


Figure 1.4: Ellipsoïde des indices.

L'ellipsoïde des indices et les différents vecteurs électromagnétiques apparaissent sur la figure(1.4).



L'ellipsoïde des indices permet de déterminer les orientations des vecteurs  $D'$  et  $D''$ , liés aux deux ondes qui se propagent dans le milieu [25]. Ces états propres sont rectilignes et orthogonaux. Les indices correspondants sont égaux aux demi-longueurs des axes de l'ellipse (e) d'intersection du plan d'onde (P) et de l'ellipsoïde des indices (E).

Lorsque la direction de la vibration d'une onde plane est l'un des deux axes de l'ellipse (e) d'intersection du plan d'onde et de l'ellipsoïde des indices, l'onde se propage sans déformer la vibration.

Il est plus simple, pour représenter les propriétés d'un milieu anisotropes, d'utiliser l'ellipsoïde des indices plutôt que la surface des indices.

Dans le cas où deux indices sont égaux, par exemple  $n_x = n_y$ , l'ellipsoïde est de révolution. C'est le cas particulier d'un milieu uniaxe.

## 1.7 Propagation d'une onde dans un milieu anisotrope uniaxe

Le milieu uniaxe est un milieu anisotrope dont deux des trois indices principaux sont égaux [26].

Supposons les axes choisis de façon que ce soient les deux indices correspondant aux axes  $(O \vec{e}_x)$  et  $(O \vec{e}_y)$  :  $\varepsilon_x = \varepsilon_y \neq \varepsilon_z$ . On montre dans la suite, que l'ellipsoïde des indices est de révolution autour de l'axe  $(O \vec{e}_z)$ . La direction  $(O \vec{e}_z)$  s'appelle la direction de l'axe optique.

Souvent, on pose pour un milieu uniaxe, dont l'axe optique a pour direction l'axe  $\vec{e}_z$  :

$$V_x = V_y = V_o \quad V_z = V_e \quad \text{et} \quad n_o = \frac{c}{V_o} \quad n_e = \frac{c}{V_e},$$

donc :

$$n_x = n_y = n_o \quad \text{et} \quad n_z = n_e$$

les indices principaux  $n_o$  et  $n_e$  sont respectivement appelés indice **ordinaire** et indice **extraordinaire**.

Suivant que l'indice ordinaire  $n_o$  est plus petit ou plus grand que l'indice extraordinaire  $n_e$  on dira que le milieu est positif ou négatif. Les biréfringences des matériaux sont en général faibles et les plus fortes atteignent quelques dixièmes.

### Exemples de milieux uniaxes

- Milieux négatifs:

Ce sont des milieux tels que  $n_e - n_o < 0$ . L'exemple typique est la calcite ( $\text{CaCO}_3$ ). Pour la longueur d'onde  $\lambda = 632,8 \text{ nm}$ , les indices de la calcite valent [27]:

$$n_o = 1,656 \qquad n_e = 1,485$$

- Milieux positifs:

Ce sont des milieux tels que  $n_e - n_o > 0$ . L'exemple typique est le quartz ( $\text{SiO}_2$ ). Pour la longueur d'onde  $\lambda = 632,8 \text{ nm}$ , les indices du quartz valent [27]:

$$n_o = 1,542 \qquad n_e = 1,551.$$

#### 1.7.1 Ellipsoïde des indices d'un milieu uniaxe

L'équation (1.39) devient dans ce cas:

$$\frac{x^2 + y^2}{n_o^2} + \frac{z^2}{n_e^2} = 1.$$

C'est l'ellipsoïde des indices pour un milieu anisotrope uniaxe.

Dans la figure(1.5), on a représenté l'ellipsoïde des indices dans un milieu uniaxe. Les deux vibrations rectangulaires qui se propagent sans déformation dans le milieu uniaxe sont :

- la vibration ordinaire perpendiculaire à l'axe optique caractérisée par l'état de polarisation  $\vec{D}_o$ , elle se propage suivant les même lois que dans un milieu isotrope d'indice égal à l'indice ordinaire  $n_o$ .
- la vibration extraordinaire caractérisée par l'état de polarisation  $\vec{D}_e$ , l'indice qui lui correspond est l'indice extraordinaire  $n_e(\theta)$ . La valeur de cet indice dépend de la direction du plan d'onde, elle varie entre les valeurs des indices principaux ordinaire  $n_o$  et extraordinaire  $n_e$ . (voir équation 1.44).

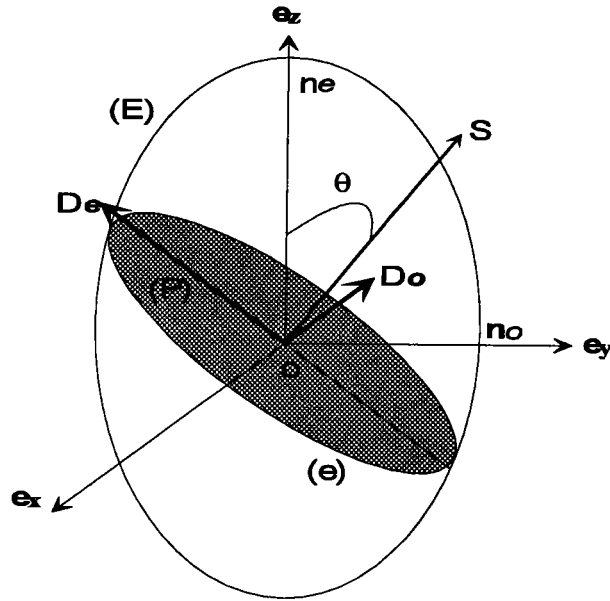


Figure 1.5: Ellipsoïde des indices dans un milieu uniaxe anisotrope.

### 1.7.2 Équation de Fresnel

L'équation de Fresnel (1.30) s'écrit dans ce cas:

$$(V^2 - V_o^2) \left\{ (s_x^2 + s_y^2)(V^2 - V_e^2) + s_z^2(V^2 - V_o^2) \right\} = 0. \quad (1.40)$$

Si  $\theta$  est l'angle que fait le vecteur de propagation  $\vec{S}(s_x, s_y, s_z)$  avec l'axe  $\vec{e}_z$ , on aura :

$$\begin{cases} s_x^2 + s_y^2 = \sin^2 \theta \\ s_z^2 = \cos^2 \theta, \end{cases} \quad (1.41)$$

donc l'équation (1.40) s'écrit:

$$(V^2 - V_o^2) \left\{ (V^2 - V_e^2) \sin^2 \theta + (V^2 - V_o^2) \cos^2 \theta \right\} = 0. \quad (1.42)$$

Deux solutions en  $V^2$  sont possibles pour cette équation :

$$\begin{cases} V^2 = V_o^2 \\ V^2 = V_o^2 \cos^2 \theta + V_e^2 \sin^2 \theta. \end{cases} \quad (1.43)$$

On détermine ainsi l'indice de réfraction du milieu :

pour l'onde ordinaire :  $n = n_o$

pour l'onde extraordinaire :

$$\frac{1}{n_e^2(\theta)} = \frac{\cos^2 \theta}{n_o^2} + \frac{\sin^2 \theta}{n_e^2} \quad (1.44)$$

l'indice ordinaire  $n_o$  est constant (indépendant de  $\theta$ ). Par contre l'indice extraordinaire varie en fonction de l'angle  $\theta$ , c'est pour cette raison qu'il est noté  $n_e(\theta)$ .

En posant :

$$s_x = \frac{K_x}{K} \qquad s_y = \frac{K_y}{K} \qquad s_z = \frac{K_z}{K},$$

et:

$$V^2 = \frac{\omega^2}{K^2} \qquad V_o^2 = \frac{c^2}{n_o^2} \qquad V_e^2 = \frac{c^2}{n_e^2}.$$

L'équation (1.40) peut s'écrire:

$$\left(\frac{\omega^2}{K^2} - \frac{c^2}{n_o^2}\right) \left\{ \left(\frac{K_x^2 + K_y^2}{K^2}\right) \left(\frac{\omega^2}{K^2} - \frac{c^2}{n_e^2}\right) + \frac{K_z^2}{K} \left(\frac{\omega^2}{K^2} - \frac{c^2}{n_o^2}\right) \right\} = 0$$

Après simple calcul, on obtient:

$$\left(\frac{\omega^2}{K^2} - \frac{c^2}{n_o^2}\right) \left(\frac{K_x^2 + K_y^2}{n_e^2} + \frac{K_z^2}{n_o^2} - \frac{\omega^2}{c^2}\right) = 0 \quad (1.45)$$

La relation (1.45) a une importance majeure dans le calcul des coefficients de réflexion (de **Fresnel**) dans un milieu uniaxe.

## 1.8 Conclusion du premier chapitre

Pour une direction de propagation donnée dans un milieu diélectrique anisotrope, il existe deux ondes orthogonales qui se propagent avec des vitesses différentes, c'est-à-dire avec des indices de réfraction différents.

Les vitesses de propagation des ondes et les indices correspondant sont donnés, soit par la résolution de l'équation de **Fresnel**, soit en utilisant l'ellipsoïde des indices.

C'est l'existence des deux valeurs pour l'indice de réfraction qui est à l'origine du concept de **biréfringence**. Ce phénomène optique peut être obtenu dans des milieux naturellement isotropes, lorsqu'on y crée une dissymétrie par l'action de forces extérieures.

La polarisation de ces deux ondes dépend du type d'anisotropie optique. Par exemple, pour les milieux anisotropes linéaires, elles sont polarisées rectilignement. Dans un milieu anisotrope circulaire, les états de polarisation sont elliptiques.

Dans le cas particulier des milieux uniaxes, il existe un indice ordinaire indépendant de la direction de propagation et un indice extraordinaire dépendant de cette direction.

## Chapitre 2

# Réflexion et réfraction dans un milieu anisotrope uniaxe

## 2.1 Axe optique orienté arbitrairement par rapport à la surface du cristal et au plan d'incidence

### 2.1.1 Représentation

Soit un cristal anisotrope uniaxe dont  $(\vec{a}, \vec{b}, \vec{c})$  sont les axes principaux propres à l'échantillon et  $(\vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$  sont les axes du système laboratoire. Les vecteurs  $\vec{x}, \vec{y}$  et  $\vec{z}$  sont choisis de telle sorte que le plan d'incidence coïncide avec le plan  $(\vec{x}, \vec{z})$ . L'axe optique est confondu avec l'axe  $\vec{c}$ . Une onde plane incidente se réfléchit sur la surface  $(\vec{x}, \vec{y})$ . En général, deux ondes planes sont transmises ; l'onde ordinaire caractérisée par le vecteur d'onde  $\vec{K}_o$  et l'onde extraordinaire caractérisée par  $\vec{K}_e$ . (Voir figure 2.1). L'axe  $\vec{z}$  est perpendiculaire à cette surface. On suppose que les composantes du vecteur champ électrique  $\vec{E}$  et celles du vecteur induction magnétique  $\vec{B}$  sont proportionnelles au terme  $\exp\{i(\omega t - \vec{K} \cdot \vec{r})\}$ , avec  $\omega$  est la fréquence angulaire et  $\vec{K}$  est le vecteur d'onde incident. Le vecteur  $\vec{K}$ , peut s'écrire :

$$\vec{K} = K_t \vec{x} + K_z \vec{z}$$

or

$$\vec{r} = x \vec{x} + y \vec{y} + z \vec{z}$$

d'où

$$\vec{K} \cdot \vec{r} = K_z z + K_t x.$$

$K_t$  est la composante du vecteur d'onde tangentielle à la surface et  $K_z$  est la composante du vecteur d'onde normal à la surface.

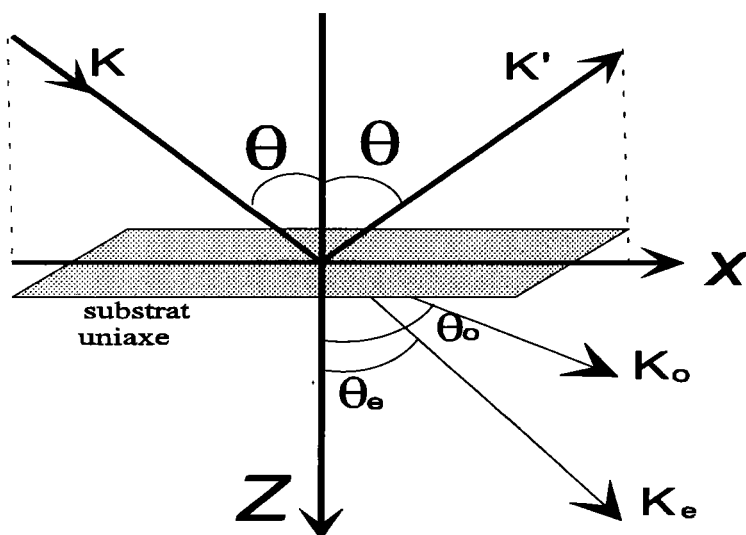


Figure 2.1: Réflexion et réfraction sur la surface du cristal.

$K_t = nK \sin(\theta)$ , où  $\theta$  est l'angle d'incidence,  $n$  est l'indice du milieu ambiant et  $K = \frac{\omega}{c}$  ( $c$  est la vitesse de la lumière).

### 2.1.2 Propagation de la lumière dans un milieu anisotrope

Le milieu anisotrope considéré, est non magnétique et électriquement anisotrope.

D'après les équations de Maxwell ( $\vec{\nabla} \wedge \vec{E} = -iK \vec{B}$ ) et ( $\vec{\nabla} \wedge \vec{B} = iK \vec{D}$ ), on peut écrire:

$$-\frac{\partial E_y}{\partial z} = -iK B_x \quad -\frac{\partial B_y}{\partial z} = iK D_x \quad (2.1)$$

$$\frac{\partial E_x}{\partial z} + iK_t E_z = -iK B_y \quad \frac{\partial B_x}{\partial z} + iK_t B_z = iK D_y \quad (2.2)$$

$$-iK_t E_y = -iK B_z \quad -iK_t B_y = iK D_z \quad (2.3)$$

Lorsqu'on élimine les composantes  $B_x$ ,  $B_y$  et  $B_z$  les six équations se réduisent à trois :

$$\frac{\partial^2 E_x}{\partial z^2} + iK_t \frac{\partial E_z}{\partial z} + K^2 D_x = 0 \quad (2.4)$$

$$\frac{\partial^2 E_y}{\partial z^2} - K_t^2 E_y + K^2 D_y = 0 \quad (2.5)$$

$$iK_t \frac{\partial E_x}{\partial z} - K_t^2 E_z + K^2 D_z = 0 \quad (2.6)$$

Dans un milieu anisotrope, chaque composante du vecteur induction électrique ( $\vec{D}$ ) est une fonction linéaire des trois composantes du vecteur champ électrique ( $\vec{E}$ ) :

$$\begin{pmatrix} D_x \\ D_y \\ D_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \varepsilon_{xx} & \varepsilon_{xy} & \varepsilon_{xz} \\ \varepsilon_{yx} & \varepsilon_{yy} & \varepsilon_{yz} \\ \varepsilon_{zx} & \varepsilon_{zy} & \varepsilon_{zz} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix}.$$

Les éléments  $\varepsilon_{ij}(i, j = x, y, z)$ , sont les composantes du tenseur de permittivité dans le système d'axes laboratoire.

Les équations (2.4), (2.5) et (2.6) deviennent :

$$(-K_z^2 + K^2\varepsilon_{xx})E_x + K^2\varepsilon_{xy}E_y + (K_zK_t + K^2\varepsilon_{xz})E_z = 0, \quad (2.7)$$

$$K^2\varepsilon_{yx}E_x + (-K_z^2 - K_t^2 + K^2\varepsilon_{yy})E_y + K^2\varepsilon_{yz}E_z = 0, \quad (2.8)$$

$$(K_zK_t + K^2\varepsilon_{zx})E_x + K^2\varepsilon_{zy}E_y + (-K_t^2 + K^2\varepsilon_{zz})E_z = 0. \quad (2.9)$$

Une solution en E est possible, si le déterminant suivant est nul :

$$\begin{vmatrix} K^2\varepsilon_{xx} - K_z^2 & K^2\varepsilon_{xy} & K_zK_t + K^2\varepsilon_{xz} \\ K^2\varepsilon_{yx} & K^2\varepsilon_{yy} - K_z^2 - K_t^2 & K^2\varepsilon_{yz} \\ K_zK_t + K^2\varepsilon_{zx} & K^2\varepsilon_{zy} & K^2\varepsilon_{zz} - K_t^2 \end{vmatrix} = 0. \quad (2.10)$$

Le calcul de ce déterminant donne une équation quadratique en  $K_z$ , dont les solutions (les modes normaux) dépendent des éléments du tenseur  $\varepsilon_{ij}$  ( $i, j = x, y, z$ ).

### 2.1.3 Tenseur de permittivité dans un milieu anisotrope

#### Problème du changement de base

Dans le repère propre du matériau, le tenseur de permittivité  $\varepsilon_{ij}$  est diagonal. Notons  $\varepsilon_a, \varepsilon_b$  et  $\varepsilon_c$  les éléments diagonaux du tenseur  $\varepsilon_{ij}$  dans le système d'axes principaux.

La position d'un système de coordonnées par rapport à un autre, peut être entièrement caractérisée par les trois angles d'Euler [28].

Dans notre cas, pour trouver une relation entre les axes du laboratoire et les axes principaux, on utilise la transformation des coordonnées exprimée en fonction des cosinus directeurs. On pose :

$$\begin{pmatrix} \vec{x} \\ \vec{y} \\ \vec{z} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \alpha_1 & \alpha_2 & \alpha_3 \\ \beta_1 & \beta_2 & \beta_3 \\ \gamma_1 & \gamma_2 & \gamma_3 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \vec{a} \\ \vec{b} \\ \vec{c} \end{pmatrix}.$$

avec

$\alpha_1 = \vec{x} \cdot \vec{a}$ ,  $\alpha_1$  est le cosinus de l'angle entre les deux vecteurs  $\vec{x}$  et  $\vec{a}$ .

$\beta_1 = \vec{y} \cdot \vec{a}$ ,  $\beta_1$  est le cosinus de l'angle entre les deux vecteurs  $\vec{y}$  et  $\vec{a}$ .

$\gamma_1 = \vec{z} \cdot \vec{a}$ ,  $\gamma_1$  est le cosinus de l'angle entre les deux vecteurs  $\vec{z}$  et  $\vec{a}$ .

La même définition est valable pour  $\alpha_2, \beta_2, \gamma_2, \alpha_3, \beta_3$  et  $\gamma_3$ .

La transformation inverse s'écrit :

$$\begin{pmatrix} \vec{a} \\ \vec{b} \\ \vec{c} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \alpha_1 & \beta_1 & \gamma_1 \\ \alpha_2 & \beta_2 & \gamma_2 \\ \alpha_3 & \beta_3 & \gamma_3 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \vec{x} \\ \vec{y} \\ \vec{z} \end{pmatrix}.$$

Les neuf cosinus directeurs  $\alpha_1 \dots \gamma_3$  ne sont pas indépendants ; les conditions d'orthonormalité permettent d'écrire :

$$\begin{aligned} \vec{x} \cdot \vec{x} &= 1 \longrightarrow \alpha_1^2 + \alpha_2^2 + \alpha_3^2 = 1 \\ \vec{y} \cdot \vec{y} &= 1 \longrightarrow \beta_1^2 + \beta_2^2 + \beta_3^2 = 1 \\ \vec{z} \cdot \vec{z} &= 1 \longrightarrow \gamma_1^2 + \gamma_2^2 + \gamma_3^2 = 1 \\ \vec{x} \cdot \vec{y} &= 0 \longrightarrow \alpha_1\beta_1 + \alpha_2\beta_2 + \alpha_3\beta_3 = 0 \\ \vec{x} \cdot \vec{z} &= 0 \longrightarrow \alpha_1\gamma_1 + \alpha_2\gamma_2 + \alpha_3\gamma_3 = 0 \\ \vec{y} \cdot \vec{z} &= 0 \longrightarrow \beta_1\gamma_1 + \beta_2\gamma_2 + \beta_3\gamma_3 = 0. \end{aligned}$$

D'autres conditions d'orthonormalité peuvent être écrites à partir des vecteurs  $\vec{a}$ ,  $\vec{b}$  et  $\vec{c}$ , par exemple  $\vec{a} \cdot \vec{a} = 1$ ,  $\vec{a} \cdot \vec{b} = 0$ , ect.

Par ailleurs, il a été démontré [29] que si X est la matrice d'une forme M dans une base  $e_i$ , Y est la matrice de cette forme dans une base  $f_i$  et P est la matrice de passage de la première base à la seconde, on a alors la relation suivante :

$$Y = {}^t P X P.$$

Appliquons ce théorème au tenseur de permittivité  $\varepsilon$ , on en déduit :

$$\begin{pmatrix} \varepsilon_{xx} & \varepsilon_{xy} & \varepsilon_{xz} \\ \varepsilon_{yx} & \varepsilon_{yy} & \varepsilon_{yz} \\ \varepsilon_{zx} & \varepsilon_{zy} & \varepsilon_{zz} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \alpha_1 & \alpha_2 & \alpha_3 \\ \beta_1 & \beta_2 & \beta_3 \\ \gamma_1 & \gamma_2 & \gamma_3 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \varepsilon_a & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_b & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_c \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \alpha_1 & \beta_1 & \gamma_1 \\ \alpha_2 & \beta_2 & \gamma_2 \\ \alpha_3 & \beta_3 & \gamma_3 \end{pmatrix}$$

$$= \begin{pmatrix} \varepsilon_a \alpha_1^2 + \varepsilon_b \alpha_2^2 + \varepsilon_c \alpha_3^2 & \varepsilon_a \alpha_1 \beta_1 + \varepsilon_b \alpha_2 \beta_2 + \varepsilon_c \alpha_3 \beta_3 & \varepsilon_a \alpha_1 \gamma_1 + \varepsilon_b \alpha_2 \gamma_2 + \varepsilon_c \alpha_3 \gamma_3 \\ \varepsilon_a \alpha_1 \beta_1 + \varepsilon_b \alpha_2 \beta_2 + \varepsilon_c \alpha_3 \beta_3 & \varepsilon_a \beta_1^2 + \varepsilon_b \beta_2^2 + \varepsilon_c \beta_3^2 & \varepsilon_a \beta_1 \gamma_1 + \varepsilon_b \beta_2 \gamma_2 + \varepsilon_c \beta_3 \gamma_3 \\ \varepsilon_a \alpha_1 \gamma_1 + \varepsilon_b \alpha_2 \gamma_2 + \varepsilon_c \alpha_3 \gamma_3 & \varepsilon_a \beta_1 \gamma_1 + \varepsilon_b \beta_2 \gamma_2 + \varepsilon_c \beta_3 \gamma_3 & \varepsilon_a \gamma_1^2 + \varepsilon_b \gamma_2^2 + \varepsilon_c \gamma_3^2 \end{pmatrix} \quad (2.11)$$

Remarquons que le tenseur de permittivité est symétrique  $\varepsilon_{ij} = \varepsilon_{ji}$ .



## 2.2 Les modes normaux dans un cristal uniaxe

Les modes normaux dans un cristal uniaxe sont les ondes ordinaire et extraordinaire caractérisées par les composantes du vecteur d'onde normal à la surface, respectivement  $K_{oz}$  et  $K_{ez}$  et par les vecteurs champ électrique  $\vec{E}_o$  et  $\vec{E}_e$ .

### Vecteurs d'onde

Dans un milieu uniaxe deux des trois constantes diélectriques principales sont égales. Soit  $\varepsilon_a = \varepsilon_b = \varepsilon_o = N_o^2$  et  $\varepsilon_c = \varepsilon_e = N_e^2$ .  $N_o$  et  $N_e$  sont respectivement les indices complexes principaux ordinaire et extraordinaire. En général on pose  $\delta\varepsilon = \varepsilon_e - \varepsilon_o = N_e^2 - N_o^2$ , pour définir l'anisotropie d'un milieu. En tenant compte de cette définition et les conditions d'orthonormalité, le tenseur diélectrique dans le système laboratoire devient :

$$\begin{pmatrix} \varepsilon_{xx} & \varepsilon_{xy} & \varepsilon_{xz} \\ \varepsilon_{yx} & \varepsilon_{yy} & \varepsilon_{yz} \\ \varepsilon_{zx} & \varepsilon_{zy} & \varepsilon_{zz} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} N_o^2 + \alpha_3^2 \delta\varepsilon & \alpha_3 \beta_3 \delta\varepsilon & \alpha_3 \gamma_3 \delta\varepsilon \\ \alpha_3 \beta_3 \delta\varepsilon & N_o^2 + \beta_3^2 \delta\varepsilon & \beta_3 \gamma_3 \delta\varepsilon \\ \alpha_3 \gamma_3 \delta\varepsilon & \beta_3 \gamma_3 \delta\varepsilon & N_o^2 + \gamma_3^2 \delta\varepsilon \end{pmatrix}. \quad (2.12)$$

Dans la suite on substitue  $\alpha_3, \beta_3$  et  $\gamma_3$  par  $\alpha, \beta$  et  $\gamma$ . Ce sont les cosinus directeurs de l'axe optique (l'axe  $\vec{c}$ ). D'où :

$$\vec{c} \cdot \vec{c} = 1 \longrightarrow \alpha^2 + \beta^2 + \gamma^2 = 1 \quad (-1 \leq \alpha, \beta, \gamma \leq 1). \quad (2.13)$$

Les modes normaux recherchés sont les valeurs propres déduites à partir de l'équation (2.10). Dans ce déterminant on remplace les éléments du tenseur  $\varepsilon_{ij}$  par les expressions données par (2.12). On aura donc :

$$\begin{vmatrix} K^2 N_o^2 - K_z^2 + K^2 \alpha^2 \delta\varepsilon & K^2 \alpha \beta \delta\varepsilon & K^2 \alpha \gamma \delta\varepsilon + K_z K_t \\ K^2 \alpha \beta \delta\varepsilon & K^2 N_o^2 - K_z^2 - K_t^2 + K^2 \beta^2 \delta\varepsilon & K^2 \beta \gamma \delta\varepsilon \\ K^2 \alpha \gamma \delta\varepsilon + K_z K_t & K^2 \gamma \beta \delta\varepsilon & K^2 N_o^2 - K_t^2 + K^2 \gamma^2 \delta\varepsilon \end{vmatrix} = 0. \quad (2.14)$$

Après simplification, l'équation (2.14) peut s'écrire sous la forme :

$$(K_z^2 - N_o^2 K^2 + K_t^2) \left( (N_o^2 + \gamma^2 \delta\varepsilon) K_z^2 + (2\alpha\gamma K_t \delta\varepsilon) K_z - \{N_o^2 N_e^2 K^2 - K_t^2 (N_o^2 + \alpha^2 \delta\varepsilon)\} \right) = 0 \quad (2.15)$$

Le terme à gauche de ce produit donne la solution :

$$\begin{aligned} K_{oz}^2 &= N_o^2 K^2 - K_t^2 \\ &= K^2 (N_o^2 - n^2 \sin^2 \theta). \end{aligned} \quad (2.16)$$

$K_{oz}$  est la composante normale du vecteur d'onde de l'onde ordinaire.

Le deuxième terme est une équation de second degré, dont les racines sont :

$$K_{ez} = \frac{\pm \sqrt{\Delta'} - \alpha \gamma \delta K_t \varepsilon}{N_o^2 + \gamma^2 \delta \varepsilon}, \quad (2.17)$$

avec :

$$\Delta' = N_o^2 N_e^2 (N_o^2 + \gamma^2 \delta \varepsilon) K^2 - N_o^2 (N_e^2 - \beta^2 \delta \varepsilon) K_t^2. \quad (2.18)$$

$K_{ez}$  est la composante normale du vecteur d'onde de l'onde extraordinaire.

Il existe une relation entre  $K_{ez}^2$  et  $K_{oz}^2$ . En effet, effectuons la soustraction entre ces deux équations :

$$(N_o^2 + \gamma^2 \delta \varepsilon) K_{ez}^2 + (2\alpha \gamma K_t \delta \varepsilon) K_{ez} = N_o^2 N_e^2 K^2 - K_t^2 (N_o^2 + \alpha^2 \delta \varepsilon)$$

et

$$(N_o^2 + \gamma^2 \delta \varepsilon) K_{oz}^2 + (2\alpha \gamma K_t \delta \varepsilon) K_{oz} = (N_o^2 + \gamma^2 \delta \varepsilon) (K^2 N_o^2 - K_t^2) + (2\alpha \gamma K_t \delta \varepsilon) K_{oz},$$

on obtient :

$$K_{ez}^2 - K_{oz}^2 = \frac{\delta \varepsilon}{(N_o^2 + \gamma^2 \delta \varepsilon)} \{ \beta^2 K^2 N_o^2 + (\alpha K_{oz} - \gamma K_t)^2 + 2\alpha \gamma K_t (K_{oz} - K_{ez}) \} \quad (2.19)$$

L'équation (2.19) permet de calculer  $K_{ez}$  en fonction de  $K_{oz}$ , par exemple, si  $\alpha = \gamma = 0$  et  $\beta = 1$ , c'est-à-dire, si l'axe optique est perpendiculaire au plan d'incidence, on a :

$$K_{ez}^2 = K_{oz}^2 + N_e^2 K^2 - N_o^2 K^2 = N_e^2 K^2 - K_t^2.$$

### Vecteurs champ électrique

Pour déterminer le vecteur champ électrique  $\vec{E}_o$  du mode ordinaire, on substitue  $K_z$  à  $K_{oz}$  dans les équations (2.7), (2.8) et (2.9), on obtient un système de trois équations sous la forme  $\sum_j b_{ij} E_j = 0$ . Les  $b_{ij}$  sont les éléments de matrice correspondant au déterminant suivant :

$$\begin{vmatrix} K_t^2 + K^2\alpha^2\delta\varepsilon & K^2\alpha\beta\delta\varepsilon & K^2\alpha\gamma\delta\varepsilon + K_{oz}K_t \\ K^2\alpha\beta\delta\varepsilon & K^2\beta^2\delta\varepsilon & K^2\beta\gamma\delta\varepsilon \\ K^2\alpha\gamma\delta\varepsilon + K_{oz}K_t & K^2\gamma\beta\delta\varepsilon & K_{oz}^2 + K^2\gamma^2\delta\varepsilon \end{vmatrix} = 0. \quad (2.20)$$

Les composantes  $E_{ox}$ ,  $E_{oy}$  et  $E_{oz}$  sont respectivement proportionnelles à  $(b_{22}b_{33} - b_{23}^2)$ ,  $(b_{13}b_{23} - b_{12}b_{33})$  et  $(b_{12}b_{23} - b_{13}b_{22})$ , avec :

$$\begin{aligned} b_{11} &= K_t^2 + K^2\alpha^2\delta\varepsilon & b_{12} &= K^2\alpha\beta\delta\varepsilon & b_{13} &= K^2\alpha\gamma\delta\varepsilon + K_{oz}K_t \\ b_{21} &= K^2\alpha\beta\delta\varepsilon & b_{22} &= K^2\beta^2\delta\varepsilon & b_{23} &= K^2\beta\gamma\delta\varepsilon \\ b_{31} &= K^2\alpha\gamma\delta\varepsilon + K_{oz}K_t & b_{32} &= K^2\gamma\beta\delta\varepsilon & b_{33} &= K_{oz}^2 + K^2\gamma^2\delta\varepsilon \end{aligned}$$

On trouve :

$$E_{ox} = \lambda_o\beta K_{oz} \quad (2.21)$$

$$E_{oy} = \lambda_o(\gamma K_t - \alpha K_{oz}) \quad (2.22)$$

$$E_{oz} = -\lambda_o\beta K_t \quad (2.23)$$

$\lambda_o$  est un facteur de normalisation.

Remarquons que  $\vec{E}_o \cdot \vec{c} = 0$ , avec  $\vec{c} = \alpha \vec{x} + \beta \vec{y} + \gamma \vec{z}$ , il en résulte que le vecteur champ électrique du mode ordinaire, est toujours perpendiculaire à l'axe optique.

De la même façon, pour déterminer le champ électrique du mode extraordinaire, on substitue  $K_z$  par  $K_{ez}$  dans les équations (2.7), (2.8) et (2.9). On trouve :

$$E_{ex} = \lambda_e(\gamma K_{ez}K_t - \alpha K_{oz}^2) \quad (2.24)$$

$$E_{ey} = -\lambda_e(\beta N_o^2 K^2) \quad (2.25)$$

$$E_{ez} = \lambda_e(\alpha K_{ez}K_t - \gamma(N_o^2 K^2 - K_{ez}^2)), \quad (2.26)$$

$\lambda_e$  est un facteur de normalisation.

Le produit scalaire des deux vecteurs  $\vec{E}_o$  et  $\vec{E}_e$  est :

$$\vec{E}_o \cdot \vec{E}_e = \lambda_o\lambda_e(K_{oz} - K_{ez})(\alpha K_t + \gamma K_{ez})\beta K_t. \quad (2.27)$$

Les vecteurs champ électrique des modes ordinaire et extraordinaire sont orthogonaux si l'une au moins de ces conditions suivantes est satisfaite :

- $\beta = 0$  : l'axe optique est dans le plan d'incidence.
- $K_t = nK \sin(\theta) = 0$  : l'incidence est normale.
- $K_{oz} = K_{ez}$  : milieu isotrope.
- $\alpha K_t + \gamma K_{ez} = 0$ .

## 2.3 Coefficients de réflexion

Pour la réflexion sur une surface plane, on décompose le vecteur champ électrique incident  $\vec{E}$  en deux vecteurs  $\vec{E}_s$  et  $\vec{E}_p$  :

- $\vec{E}_s$  : la composante du vecteur  $\vec{E}$  perpendiculaire au plan d'incidence : onde type S.
- $\vec{E}_p$  : la composante du vecteur  $\vec{E}$  contenu dans le plan d'incidence : onde type P.

### 2.3.1 Onde type S

La seule composante non nulle du vecteur champ électrique incident  $\vec{E}_s^i$  est selon l'axe  $O\vec{y}$ . L'onde réfléchi est caractérisée par le vecteur  $\vec{E}_s^r$ , et celle transmise par  $\vec{E}_s^t$ .

Les expressions de ces vecteurs dans le repère  $(\vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$  sont :

$$\begin{aligned}
 \vec{E}_s^i &= [e^{-iK_z z} e^{i(\omega t - K_t x)}] \vec{y} = [e^{-iK_z z} e^{i\Lambda}] \vec{y} \\
 \vec{E}_s^r &= [R_{sp} \cos(\theta) e^{iK_z z} e^{i\Lambda}] \vec{x} + [R_{ss} e^{iK_z z} e^{i\Lambda}] \vec{y} + [R_{sp} \sin(\theta) e^{iK_z z} e^{i\Lambda}] \vec{z} \\
 \vec{E}_s^t &= [(T_{so} E_{ox} e^{-iK_{zo} z} + T_{se} E_{ex} e^{-iK_{ze} z}) e^{i\Lambda}] \vec{x} + [(T_{so} E_{oy} e^{-iK_{zo} z} + T_{se} E_{ey} e^{-iK_{ze} z}) e^{i\Lambda}] \vec{y} \\
 &\quad + [(T_{so} E_{oz} e^{-iK_{zo} z} + T_{se} E_{ez} e^{-iK_{ze} z}) e^{i\Lambda}] \vec{z},
 \end{aligned} \tag{2.28}$$

où :

$$\Lambda = \omega t - K_t x.$$

$R_{ss}$  est le coefficient de réflexion de l'onde "type S", dont la composante du vecteur champ électrique réfléchi  $\vec{E}_s^r$  est perpendiculaire au plan d'incidence.

$R_{sp}$  est celui dont la composante de  $\vec{E}_s^r$  est parallèle au plan d'incidence.

$T_{so}$  et  $T_{se}$  sont des coefficients de transmission.

Pour calculer ces coefficients, on utilise les conditions aux limites à la surface de séparation.

### 2.3. Coefficients de réflexion

Les équations (2.4), (2.5) et (2.6) se déduisent des équations de Maxwell, et montrent la continuité des composantes  $E_x$ ,  $E_y$ ,  $\frac{\partial E_x}{\partial z} + iK_t E_z$  et  $\frac{\partial E_y}{\partial z}$ .

Ecrivons la continuité de ces éléments en  $z = 0$  :

$$\begin{aligned}
 0 + R_{sp} \cos(\theta) &= T_{so} E_{ox} + T_{se} E_{ex} \\
 1 + R_{ss} &= T_{so} E_{oy} + T_{se} E_{ey} \\
 iK_z R_{sp} \cos(\theta) + iK_t R_{sp} \sin(\theta) &= -iK_{oz} T_{so} E_{ox} - iK_{ez} T_{se} E_{ex} + iK (T_{so} E_{oz} + T_{se} E_{ez}) \\
 -iK_z + iK_z R_{ss} &= -iK_{oz} T_{so} E_{oy} - iK_{ez} T_{se} E_{ey}
 \end{aligned} \tag{2.29}$$

On a un système à quatre inconnues  $R_{ss}$ ,  $R_{sp}$ ,  $T_{so}$  et  $T_{se}$ , qu'on peut résoudre en utilisant les données suivantes :

$$K_z = nK \cos(\theta) \tag{2.30}$$

$$K_t = nK \sin(\theta) \tag{2.31}$$

$$nK = K_z \cos(\theta) + K_t \sin(\theta), \tag{2.32}$$

et si on pose :

$$A_2 = \left( K_{oz} + \frac{nK}{\cos \theta} \right) E_{ox} - K_t E_{oz} \tag{2.33}$$

$$B_2 = \left( K_{ez} + \frac{nK}{\cos \theta} \right) E_{ex} - K_t E_{ez} \tag{2.34}$$

$$C_2 = (nK \sin \theta + K_{ez}) A_2 E_{ey} - (nK \sin \theta + K_{oz}) B_2 E_{oy}, \tag{2.35}$$

on trouve :

$$R_{ss} = \frac{(nK \sin \theta - K_{ez}) A_2 E_{ey} - (nK \sin \theta - K_{oz}) B_2 E_{oy}}{C_2}, \tag{2.36}$$

$$R_{sp} = \frac{2nK (A_2 E_{ex} - B_2 E_{ox})}{C_2}. \tag{2.37}$$

#### 2.3.2 Onde type P

Dans ce cas la composante du vecteur champ électrique incident  $E_p^i$  selon l'axe  $O\vec{y}$  est nulle. Les expressions des vecteurs incident  $E_p^i$ , réfléchi  $E_p^r$  et transmis  $E_p^t$  sont :

$$\begin{aligned}
 \vec{E}_p^i &= [\cos \theta e^{-iK_z z} e^{i\Lambda}] \vec{x} + [-\sin \theta e^{-iK_z z} e^{i\Lambda}] \vec{z} \\
 \vec{E}_p^r &= [R_{pp} \cos(\theta) e^{iK_z z} e^{i\Lambda}] \vec{x} + [R_{ps} e^{iK_z z} e^{i\Lambda}] \vec{y} + [R_{pp} \sin(\theta) e^{iK_z z} e^{i\Lambda}] \vec{z}
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \vec{E}_p^t = & [(T_{po}E_{ox}e^{-iK_{oz}z} + T_{pe}E_{ex}e^{-iK_{ez}z})e^{i\Lambda}] \vec{x} + [(T_{po}E_{oy}e^{-iK_{oz}z} + T_{pe}E_{ey}e^{-iK_{ez}z})e^{i\Lambda}] \vec{y} \\ & + [(T_{po}E_{oz}e^{-iK_{oz}z} + T_{pe}E_{ez}e^{-iK_{ez}z})e^{i\Lambda}] \vec{z}, \end{aligned} \quad (2.38)$$

où :  $R_{ps}$  est le coefficient de réflexion de l'onde "type p", dont la composante du vecteur champ électrique réfléchi est perpendiculaire au plan d'incidence.

$R_{pp}$  est celui dont la composante de  $\vec{E}^r$  est parallèle au plan d'incidence.

$T_{po}$  et  $T_{pe}$  sont des coefficients de transmission.

Pour déterminer  $R_{ps}$  et  $R_{pp}$ , écrivons la continuité des composantes  $E_x$ ,  $E_y$ ,  $\frac{\partial E_x}{\partial z} + iK E_z$  et  $\frac{\partial E_y}{\partial z}$  en  $z = 0$  :

$$\begin{aligned} \cos \theta + \cos \theta R_{pp} &= T_{po}E_{ox} + T_{pe}E_{ex} \\ 0 + R_{ps} &= T_{po}E_{oy} + T_{pe}E_{ey} \\ -inK + inK R_{pp} &= -iK_{oz}T_{po}E_{ox} - iK_{ez}T_{pe}E_{ex} + iK(T_{po}E_{oz} + T_{pe}E_{ez}) \\ 0 + iK_z R_{ps} &= -iK_{oz}T_{po}E_{oy} - iK_{ez}T_{pe}E_{ex}. \end{aligned} \quad (2.39)$$

En utilisant (2.32) et (2.35), la résolution du système (2.39) aboutit à :

$$R_{pp} = \frac{2nK \{(nK \cos \theta + K_{ez})E_{ox}E_{ey} - (nK \cos \theta + K_{oz})E_{ex}E_{oy}\} - C_2 \cos \theta}{C_2 \cos \theta} \quad (2.40)$$

$$R_{ps} = \frac{2nK (nK \cos \theta - K_{oz})E_{oy}E_{ey}}{C_2}. \quad (2.41)$$

## Résumé

Dans le cas général où l'axe optique est orienté arbitrairement par rapport à la surface du cristal et au plan d'incidence, un milieu uniaxe est caractérisé par les coefficients de réflexion suivants :

$$R_{ss} = \frac{(nK \cos \theta - K_{ez})A_2E_{ey} - (nK \cos \theta - K_{oz})B_2E_{oy}}{C_2} \quad (2.42)$$

$$R_{sp} = \frac{2nK (A_2E_{ex} - B_2E_{ox})}{C_2} \quad (2.43)$$

$$R_{ps} = \frac{2nK (K_{ez} - K_{oz})E_{oy}E_{ey}}{C_2} \quad (2.44)$$

$$R_{pp} = \frac{2nK \{(nK \cos \theta + K_{ez})E_{ox}E_{ey} - (nK \cos \theta + K_{oz})E_{ex}E_{oy}\} - C_2 \cos \theta}{C_2 \cos \theta}, \quad (2.45)$$

avec :

$$A_2 = \left(K_{oz} + \frac{nK}{\cos \theta}\right) E_{ox} - K_t E_{oz} \quad (2.46)$$

$$B_2 = \left(K_{ez} + \frac{nK}{\cos \theta}\right) E_{ex} - K_t E_{ez} \quad (2.47)$$

$$C_2 = (nK \cos \theta + K_{ez}) A_2 E_{ey} - (nK \cos \theta + K_{oz}) B_2 E_{oy}. \quad (2.48)$$

## 2.4 Étude des cas particuliers

### 2.4.1 Limite isotrope

Lorsque le milieu anisotrope à une tendance vers un milieu isotrope, les indices ordinaire et extraordinaire sont égaux. On aura donc :

$$\delta\varepsilon = \varepsilon_e - \varepsilon_o = N_e^2 - N_o^2 = 0.$$

D'après l'équation (2.19), on déduit que  $K_{oz} = K_{ez}$ .

Les composantes du vecteur champ électrique extraordinaire deviennent :

$$E_{ex} = \lambda_e K_{oz} (\gamma K_t - \alpha K_{oz}) \quad (2.49)$$

$$E_{ey} = -\lambda_e (\beta N_o^2 K^2) \quad (2.50)$$

$$E_{ez} = \lambda_e K_t (\alpha K_{oz} - \gamma K_t). \quad (2.51)$$

On remarque que  $\vec{E}_o \cdot \vec{E}_e = 0$ , le vecteur  $\vec{E}_e$  est perpendiculaire au vecteur  $\vec{E}_o$ . Ce résultat est en accord avec l'équation (2.27).

Les équations (2.43), (2.44), (2.46) et (2.47) montrent que :

$$A_2 E_{ex} - B_2 E_{ox} = 0 \quad \longrightarrow R_{sp} = 0 \quad (2.52)$$

$$K_{oz} = K_{ez} \quad \longrightarrow R_{ps} = 0 \quad (2.53)$$

$$C_2 = (nK \cos \theta + K_{oz}) (A_2 E_{ey} - B_2 E_{oy}) \quad \longrightarrow R_{ss} = \frac{nK \cos \theta - K_{oz}}{nK \cos \theta + K_{oz}} \quad (2.54)$$

Si  $\theta_o$  est l'angle de transmission, la loi de Descartes dans un milieu isotrope s'écrit :

$N_o \sin \theta_o = n \sin \theta$ , et puisque  $K_{oz}^2 = K^2 (N_o^2 - n^2 \sin^2 \theta)$ , l'équation (2.54) devient :

$$R_{ss} = \frac{n \cos \theta - N_o \cos \theta_o}{n \cos \theta + N_o \cos \theta_o}. \quad (2.55)$$

Dans la limite isotrope l'équation (2.45) s'écrit :

$$R_{pp} = \frac{2nK}{\cos \theta} \frac{(E_{ox} E_{ey} - E_{ex} E_{oy})}{(A_2 E_{ey} - B_2 E_{oy})} - 1.$$

Or

$$A_2 E_{ey} - B_2 E_{oy} = \left( \frac{N_o^2 K^2}{K_{oz}} + \frac{nK}{\cos \theta} \right) (E_{ox} E_{ey} - E_{ex} E_{oy}),$$

d'où

$$R_{pp} = \frac{nK_{oz} - N_o^2 K \cos \theta}{nK_{oz} + N_o^2 K \cos \theta}. \quad (2.56)$$

En utilisant  $K_{oz} = K N_o \cos \theta_o$ , l'équation (2.56) devient :

$$R_{pp} = \frac{n \cos \theta_o - N_o \cos \theta}{n \cos \theta_o + N_o \cos \theta}. \quad (2.57)$$

Les équations (2.55) et (2.57) montrent qu'on retrouve les coefficients de réflexion habituels à l'interface de deux milieux isotropes : le milieu ambiant caractérisé par l'indice de réfraction  $n$  et le substrat caractérisé par l'indice  $N_o$  (voir par exemple [31]).

A l'angle de Brewster  $\theta_B$ , la lumière réfléchie est totalement polarisée perpendiculairement au plan d'incidence : le coefficient  $R_{pp}$  est nul.

$$R_{pp} = 0 \longrightarrow n^2 \left( 1 - \frac{n^2}{N_o^2} \sin^2 \theta \right) = N_o^2 (1 - \sin^2 \theta),$$

d'où

$$\tan \theta_B = \frac{N_o}{n}.$$

### 2.4.2 Axe optique perpendiculaire à l'interface

Lorsque la normale à la surface de réflexion coïncide avec l'axe optique, les cosinus directeurs  $\alpha$  et  $\beta$  sont nuls et  $\gamma = \pm 1$ .

Le vecteur d'onde  $K_{ez}$  est obtenu à partir de la relation (2.19) :

$$K_{ez}^2 = N_o^2 K^2 - \frac{N_o^2}{N_e^2} \beta^2.$$

Dans ces conditions ( $\alpha = \beta = 0, \gamma = \pm 1$ ) les vecteurs champs électriques ordinaire et extraordinaire s'écrivent :

$$\begin{aligned} \vec{E}_o &= \lambda_o \vec{y}, \\ \vec{E}_e &= \lambda_e \left( K_{ez} \vec{x} - \frac{N_o^2}{N_e^2} K_t \vec{z} \right). \end{aligned} \quad (2.58)$$



## 2.4. Étude des cas particuliers

$\vec{E}_o \cdot \vec{E}_e = 0$  : le vecteur champ électrique extraordinaire est perpendiculaire au vecteur champ électrique ordinaire.

Les équations (2.42) à (2.48) montrent que :

$$A_2 = 0 \text{ et } E_{oz} = 0 \longrightarrow R_{sp} = 0 \quad (2.59)$$

$$E_{ey} = 0 \longrightarrow R_{ps} = 0 \quad (2.60)$$

$$A_2 = 0 \text{ et } E_{ey} = 0 \longrightarrow R_{ss} = \frac{nK \cos \theta - K_{oz}}{nK \cos \theta + K_{oz}} \quad (2.61)$$

$$A_2 = 0 \text{ et } C_2 = -(nK \cos \theta + K_{oz})B_2E_{oy} \longrightarrow R_{pp} = \frac{2nK K_{ez}}{nK K_{ez} + N_o^2 K^2 \cos \theta} - 1 \quad (2.62)$$

Les relations (2.61) et (2.62) peuvent encore s'écrire :

$$R_{ss} = \frac{n \cos \theta - \sqrt{N_o^2 - n^2 \sin^2 \theta}}{n \cos \theta + \sqrt{N_o^2 - n^2 \sin^2 \theta}} \quad (2.63)$$

$$R_{pp} = \frac{n \sqrt{N_e^2 - n^2 \sin^2 \theta} - N_o N_e \cos \theta}{n \sqrt{N_e^2 - n^2 \sin^2 \theta} + N_o N_e \cos \theta} \quad (2.64)$$

Ces coefficients sont comparables à ceux donnés par Winterbottom [32].

A l'angle de Brewster  $\theta_B$ , le coefficient de réflexion  $R_{pp}$  est nul.

$$R_{pp} = 0 \longrightarrow n^2(N_e^2 - n^2 \sin^2 \theta) = N_o^2 N_e^2 \cos^2 \theta,$$

d'où

$$\tan^2 \theta_B = \frac{N_e^2(N_o^2 - n^2)}{n^2(N_e^2 - n^2)}.$$

Si  $N_o = N_e$ , on retrouve l'angle de Brewster du substrat isotrope.

### 2.4.3 Axe optique parallèle à l'interface

L'axe optique est maintenant dans le plan de la surface de séparation entre le milieu isotrope et le milieu uniaxe. On pose  $\varphi$  l'angle entre l'axe  $\vec{x}$  et l'axe optique  $\vec{c}$ . En général  $\varphi$  est appelé l'azimut. L'axe optique  $\vec{c}$  est supposé placé dans le plan  $(\vec{x}, \vec{y})$ , et ces cosinus directeurs sont donnés en fonction de l'azimut par :

$$\alpha = \cos \varphi \qquad \beta = \sin \varphi \qquad \gamma = 0.$$

Le vecteur d'onde ordinaire est donné par :

$$K_{oz}^2 = N_o^2 K^2 - K_t^2,$$

le vecteur d'onde extraordinaire est défini à partir de la relation (2.19) :

$$K_{ez}^2 = K_{oz}^2 + \left(\frac{N_e^2}{N_o^2} - 1\right)(K^2 N_o^2 \sin^2 \varphi + K_{oz}^2 \cos^2 \varphi). \quad (2.65)$$

Dans ce cas les composantes du vecteur champ électrique ordinaire et extraordinaire sont :

$$E_{ox} = \lambda_o \sin \varphi K_{oz} \quad (2.66)$$

$$E_{oy} = -\lambda_o \cos \varphi K_{oz} \quad (2.67)$$

$$E_{oz} = -\lambda_o \sin \varphi K_t \quad (2.68)$$

$$E_{ex} = -\lambda_e \cos \varphi K_{oz}^2 \quad (2.69)$$

$$E_{ey} = -\lambda_e \sin \varphi N_o^2 K^2 \quad (2.70)$$

$$E_{ez} = \lambda_e \cos \varphi K_{ez} K_t. \quad (2.71)$$

Le produit scalaire de  $\vec{E}_e$  et  $\vec{E}_o$  est:

$$\vec{E}_e \cdot \vec{E}_o = -\lambda_o \lambda_e \cos \varphi \sin \varphi (K_{ez} - K_{oz}). \quad (2.72)$$

Pour déterminer les coefficients de réflexion, on calcule tout d'abord les paramètres suivants :

$$C_2 = K_{oz} (nK K_{oz}^2 + K_{ez} N_o^2 K^2 \cos \theta) (K_{oz} + nK \cos \theta) \frac{\cos^2 \varphi}{\cos \theta} - N_o^2 K^2 (nK K_{oz} + N_o^2 K^2 \cos \theta) (K_{ez} + nK \cos \theta) \frac{\sin^2 \varphi}{\cos \theta} \quad (2.73)$$

$$A_2 E_{ex} - B_2 E_{ox} = N_o^2 K^2 K_{oz} (K_{ez} - K_{oz}) \sin \varphi \cos \varphi \quad (2.74)$$

$$(K_{ez} - K_{oz}) E_{oy} E_{ey} = -N_o^2 K^2 K_{oz} (K_{ez} - K_{oz}) \sin \varphi \cos \varphi. \quad (2.75)$$

D'après les équations (2.43) et (2.44), on déduit :

$$R_{sp} = -R_{ps} = \frac{nK N_o^2 K^2 K_{oz} (K_{ez} - K_{oz}) \sin 2\varphi}{C_2}. \quad (2.76)$$

En suite, on pose égal à  $NR_{ss}$  et  $NR_{pp}$  les numérateurs respectifs de  $R_{ss}$  et  $R_{pp}$  :

$$NR_{ss} = (nK \cos \theta - K_{ez})A_2E_{ey} - (nK \cos \theta - K_{oz})B_2E_{oy} \quad (2.77)$$

$$NR_{pp} = 2nK \{(nK \cos \theta + K_{ez})E_{ox}E_{ey} - (nK \cos \theta + K_{oz})E_{ex}E_{oy}\} - C_2 \cos \theta \quad (2.78)$$

Dans les conditions de départ ( $\alpha = \sin \varphi, \beta = \sin \varphi$  et  $\gamma = 0$ ), ces numérateurs s'écrivent :

$$\begin{aligned} NR_{ss} &= K_{oz}(nK K_{oz}^2 + K_{ez}N_o^2 K^2 \cos \theta)(-K_{oz} + nK \cos \theta) \frac{\cos^2 \varphi}{\cos \theta} \\ &\quad + N_o^2 K^2 (nK K_{oz} + N_o^2 K^2 \cos \theta)(K_{ez} - nK \cos \theta) \frac{\sin^2 \varphi}{\cos \theta} \end{aligned} \quad (2.79)$$

$$\begin{aligned} NR_{pp} &= K_{oz}(nK K_{oz}^2 - K_{ez}N_o^2 K^2 \cos \theta)(K_{oz} + nK \cos \theta) \cos^2 \varphi \\ &\quad + N_o^2 K^2 (-nK K_{oz} + N_o^2 K^2 \cos \theta)(K_{ez} + nK \cos \theta) \sin^2 \varphi. \end{aligned} \quad (2.80)$$

Il est intéressant de noter la remarque suivante :

les deux coefficients  $R_{sp}$  et  $R_{ps}$  sont égaux, si l'axe optique  $\vec{c}$  est dans le plan  $(\vec{x}, -\vec{y})$ , c'est-à-dire,  $\alpha = \sin \varphi, \beta = -\sin \varphi$  et  $\gamma = 0$ .

$$R_{sp} = R_{ps} = \frac{nK N_o^2 K^2 K_{oz}(K_{ez} - K_{oz}) \sin 2\varphi}{C_2}. \quad (2.81)$$

### Résumé

- Dans le cas où l'axe optique est dans le plan de la surface de réflexion  $(\vec{x}, \vec{y})$ , les coefficients de Fresnel sont :

$$R_{sp} = -R_{ps} = \frac{nK N_o^2 K^2 K_{oz}(K_{ez} - K_{oz}) \sin 2\varphi}{C_2} \quad (2.82)$$

$$R_{ss} = \frac{NR_{ss}}{C_2} \quad (2.83)$$

$$R_{pp} = \frac{NR_{pp}}{C_2}, \quad (2.84)$$

avec  $C_2, NR_{ss}$  et  $NR_{pp}$  sont donnés par les équations (2.73), (2.83) et (2.84).

Dans la pratique, les équations (2.82)-(2.84) sont les plus utilisées pour étudier les milieux anisotropes uniaxes, c'est pourquoi nous avons développé ces équations sous formes simplifiées suivantes :

$$R_{ss} = \frac{(A_1 D - B_1 C)}{(AD - BC)}, \quad (2.85)$$

$$R_{ps} = \frac{(AB_1 - A_1B)}{(AD - BC)}, \quad (2.86)$$

$$R_{sp} = \frac{(C_1D - D_1C)}{(AD - BC)}, \quad (2.87)$$

$$R_{pp} = \frac{(AD_1 - C_1B)}{(AD - BC)}, \quad (2.88)$$

où :

$$A = (X^2 \cos \varphi + nX \cos \Phi \cos \varphi) \gamma_o \frac{\omega^2}{c^2}, \quad (2.89)$$

$$A_1 = (-X^2 \cos \varphi + nX \cos \Phi \cos \varphi) \gamma_o \frac{\omega^2}{c^2}, \quad (2.90)$$

$$B = (nN_o^2 \cos \Phi \sin \varphi + N_o Y \sin \varphi) \gamma_e \frac{\omega^3}{c^3}, \quad (2.91)$$

$$B_1 = (nN_o^2 \cos \Phi \sin \varphi - N_o Y \sin \varphi) \gamma_e \frac{\omega^3}{c^3}, \quad (2.92)$$

$$C = -(nX \sin \varphi + N_o^2 \sin \varphi \cos \Phi) \gamma_o \frac{\omega^2}{c^2}, \quad (2.93)$$

$$C_1 = -(nX \sin \varphi - N_o^2 \sin \varphi \cos \Phi) \gamma_o \frac{\omega^2}{c^2}, \quad (2.94)$$

$$D = (nX^2 \cos \varphi + Y N_o \cos \varphi \cos \Phi) \gamma_e \frac{\omega^3}{c^3}, \quad (2.95)$$

$$D_1 = (nX^2 \cos \varphi - Y N_o \cos \varphi \cos \Phi) \gamma_e \frac{\omega^3}{c^3}, \quad (2.96)$$

et

$$X^2 = N_o^2 - n^2 \sin^2 \Phi, \quad (2.97)$$

$$Y^2 = N_o^2 N_e^2 - n^2 \sin^2 \Phi (N_o^2 \sin^2 \varphi + N_e^2 \cos^2 \varphi). \quad (2.98)$$

Remarques :

- Les constantes  $\gamma_o$ ,  $\gamma_e$ ,  $\omega$  et la vitesse de la lumière  $c$  n'apparaissent pas dans les expressions des coefficients de Fresnel, puisqu'elles se simplifient.
- Pour un substrat absorbant,  $N_o$  et  $N_e$  sont complexes:

$$N_o = n_o - i.k_o \quad \text{et} \quad N_e = n_e - i.k_e$$

où  $n_o$  et  $n_e$  sont des réels, qui représentent respectivement les indices de réfraction ordinaire et extraordinaire.  $k_o$  et  $k_e$  sont les indices d'absorption.

- Nous avons obtenus les expressions des coefficients de Fresnel à l'incidence oblique (équations 2.85-2.98) en adoptant la méthode de P. Yeh [13]. Yeh a donné ces coefficients à l'incidence normale.
- Dans le cas particulier où  $\phi = 0$  (L'axe optique est dans le plan de la surface et parallèle au plan d'incidence), les coefficients de Fresnel sont :

$$R_{ss} = \frac{n \cos \theta - \sqrt{N_o^2 - n^2 \sin^2 \theta}}{n \cos \theta + \sqrt{N_o^2 - n^2 \sin^2 \theta}} \quad (2.99)$$

$$R_{ps} = 0 \quad (2.100)$$

$$R_{sp} = 0 \quad (2.101)$$

$$R_{pp} = \frac{n \sqrt{N_o^2 - n^2 \sin^2 \theta} - N_o N_e \cos \theta}{n \sqrt{N_o^2 - n^2 \sin^2 \theta} + N_o N_e \cos \theta} \quad (2.102)$$

Lorsque le coefficient  $R_{pp}$  est nul, l'angle de Brewster est :

$$\tan \theta_B = \frac{N_o \sqrt{N_e^2 - n^2}}{n \sqrt{N_o^2 - n^2}}. \quad (2.103)$$

A  $N_e = N_o$ , on retrouve l'angle de Brewster où le substrat est isotrope.

- Dans le cas où  $\phi = \Pi/2$  (L'axe optique est dans le plan de la surface et perpendiculaire au plan d'incidence), ces coefficients sont :

$$R_{ss} = \frac{n \cos \theta - \sqrt{N_e^2 - n^2 \sin^2 \theta}}{n \cos \theta + \sqrt{N_e^2 - n^2 \sin^2 \theta}} \quad (2.104)$$

$$R_{ps} = 0 \quad (2.105)$$

$$R_{sp} = 0 \quad (2.106)$$

$$R_{pp} = \frac{n \sqrt{N_o^2 - n^2 \sin^2 \theta} - N_o^2 \cos \theta}{n \sqrt{N_o^2 - n^2 \sin^2 \theta} + N_o^2 \cos \theta}. \quad (2.107)$$

L'angle de Brewster est :

$$\tan \theta_B = \frac{N_o}{n}. \quad (2.108)$$

Les coefficients calculés dans les deux cas  $\phi = 0$  et  $\phi = \Pi/2$  sont les mêmes que ceux donnés par Sosnowski [33] et utilisés par Azzam [31].

Dans les cas particuliers que nous avons étudiés (limite isotropique, axe optique perpendiculaire à la surface de réflexion et axe optique parallèle à cette surface), on constate que lorsque les vecteurs  $\vec{E}_o$  et  $\vec{E}_e$  sont orthogonaux, les deux coefficients  $R_{sp}$  et  $R_{ps}$  s'annulent. Ce résultat n'est pas toujours vrai. On peut vérifier par exemple qu'à l'incidence normale ( $\theta = 0$ ),  $R_{sp}$  et  $R_{ps}$  sont différents de zéro mais  $\vec{E}_o \cdot \vec{E}_e = 0$ .

## 2.5 Conclusion du second chapitre

Nous avons présenté les coefficients de réflexion de Fresnel, pour une onde électromagnétique incidente sur un milieu uniaxe. L'axe optique est orienté arbitrairement par rapport au plan d'incidence et la surface de réflexion. Les résultats sont exprimés en fonction des cosinus directeurs de l'axe optique relativement aux axes laboratoire ( $\vec{x}$ ,  $\vec{y}$  et  $\vec{z}$ ). Les vecteurs champ électrique ordinaire et extraordinaire sont aussi déterminés, ainsi que les composantes normales (à la surface) du vecteur d'onde ordinaire et extraordinaire.

Vu que les cosinus directeurs sont aussi des inconnus, l'exploitation pratique des coefficients de Fresnel dans ce cas général se révèle être un travail très délicat. Par conséquent, il est intéressant d'envisager l'étude des cas particuliers, par exemple, axe optique parallèle à la surface de réflexion ou perpendiculaire à cette surface.

# Chapitre 3

## Ellipsométrie

### 3.1 Polarisation de la lumière

L'étude de la polarisation de la lumière impose la prise en compte du caractère naturellement vectoriel du champ électromagnétique qui se propage dans un milieu sous forme d'onde. Par contre la théorie géométrique de la propagation de la lumière ignore cette nature vectorielle. Une approche uniquement scalaire convient parfaitement par exemple à l'étude des interférences ou de la diffraction[22]. Cette représentation scalaire est suffisante tant que l'interaction lumière-matière se traduit par une polarisation induite parallèle au champ électrique  $\vec{E}$ . Néanmoins, elle devient insuffisante pour d'autres phénomènes tels que les propriétés optiques des cristaux anisotropes. Les différentes raisons qui imposent d'utiliser la nature vectorielle de la lumière sont essentiellement dues à la présence de discontinuité des propriétés optiques des milieux, à la nature biréfringente des matériaux cristallins et même à la nature des sources optiques [22].

Il faut considérer alors la nature vectorielle de la lumière. La question qui se pose est de choisir le vecteur qui représentera le champ électromagnétique. Il est d'usage d'utiliser le vecteur champ électrique  $\vec{E}$ . Dans les milieux anisotropes, le vecteur induction électrique  $\vec{D}$  est mieux adapté. Dans ce chapitre, nous étudions l'état de polarisation d'une onde plane se propageant dans un milieu isotrope, l'état de polarisation des ondes lumineuses est donc défini par le vecteur champ électrique  $\vec{E}$ .

Selon la théorie électromagnétique de Maxwell [27], la lumière peut être représentée en fait comme une onde composée d'un vecteur champ électrique  $\vec{E}(x,y,z,t)$  et d'un vecteur champ magnétique  $\vec{H}(x,y,z,t)$ . Ces deux vecteurs, perpendiculaires entre eux, vibrent à la même fréquence et perpendiculairement à la direction de propagation.

Il faut noter que l'interaction de la lumière avec la matière résulte essentiellement de la force exercée par  $\vec{E}$  sur les électrons [31]. En effet cette force est beaucoup plus intense que celle due à l'action du champ magnétique  $\vec{H}$  sur ces électrons. L'étude de la polarisation d'une onde optique consiste à déterminer l'évolution temporelle du vecteur  $\vec{E}$  en un point donné de l'espace.

## 3.2 État de polarisation d'une onde plane

Pour une onde plane monochromatique de pulsation  $\omega$  se propageant dans un milieu isotrope selon l'axe  $o\vec{z}$ , le vecteur champ électrique peut s'écrire dans un système d'axes orthogonaux :

$$\vec{E}(x, y, z, t) = E_x \vec{x} + E_y \vec{y}$$

où :

$$E_x = A_x \cos(\omega t - kz + \delta_x) \quad (3.1)$$

$$E_y = A_y \cos(\omega t - kz + \delta_y) \quad (3.2)$$

$$E_z = 0, \quad (3.3)$$

et

- $A_x$  et  $A_y$  sont les amplitudes des vibrations ;
- $\omega = 2\pi\nu$  est la fréquence angulaire ;
- $k = \frac{2\pi}{\lambda}$  est le module du vecteur d'onde ;
- $\delta_x$  et  $\delta_y$  sont les phases des vibrations.

L'état de polarisation étant attaché par définition, à l'évolution temporelle du vecteur champ électrique, on peut dire que l'état de polarisation le plus général d'une onde plane monochromatique dans un milieu homogène est un état de polarisation elliptique. Il y a donc à distinguer entre une polarisation elliptique droite ou gauche suivant le sens de parcours de cette ellipse.



L'état de polarisation elliptique est défini par une série de paramètres. Il est possible de déterminer ces paramètres en effectuant un changement de repère  $Oxy \mapsto Ox'y'$  par rotation d'angle  $\Theta$ . La figure (3.1) fait apparaître les différents paramètres qui permettent de caractériser l'état de polarisation. Les angles  $\epsilon$  et  $\Theta$  caractérisent son orientation et son ellipticité.

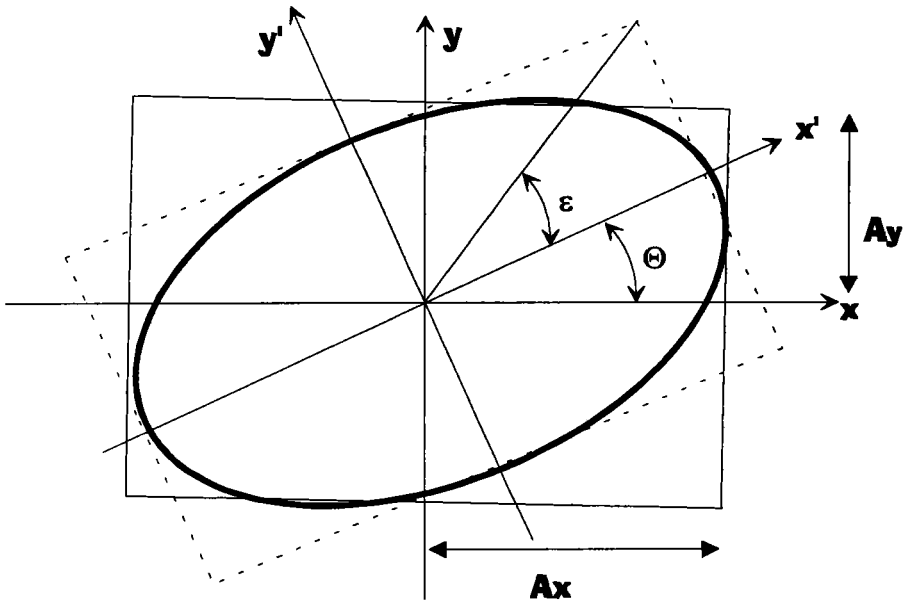


Figure 3.1: Paramètres de l'état de polarisation elliptique.

Les deux angles  $\epsilon$  et  $\Theta$  ne dépendent que du rapport  $\tan \Phi = \frac{A_x}{A_y}$  et de la différence  $\delta$  des phases  $\delta_y$  et  $\delta_x$  selon les équations :

$$\tan 2\Theta = -\tan 2\Phi \cos \delta,$$

$$\sin 2\epsilon = -\sin 2\Phi \sin \delta.$$

Sur la figure (3.2) nous avons représenté pour diverses valeurs du déphasage  $\delta$ , la forme exacte de la polarisation elliptique de la lumière.

La convention de sens utilisée généralement par les opticiens est celle de la direction d'observation. Le sens de rotation sur l'ellipse dépend naturellement du signe de la différence de phase  $\delta$ .

Par convention, quand la différence de phase  $\delta = \delta_y - \delta_x$  est comprise entre  $\pi$  et  $2\pi$ , l'ellipse est dite droite et elle est parcourue dans le sens horaire en regardant dans le faisceau, [34]. L'ellipse est dite gauche si elle est parcourue dans le sens trigonométrique en regardant dans le faisceau ( $0 < \delta < \pi$ ).

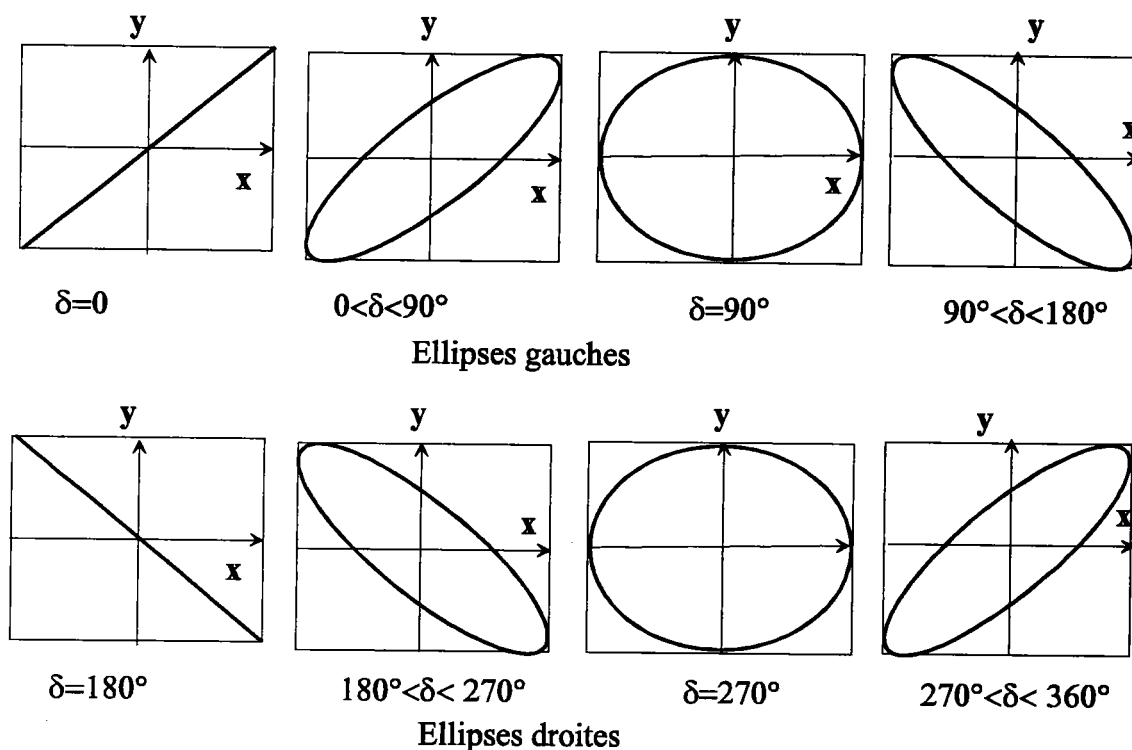


Figure 3.2: Différentes formes de l'ellipse en fonction du déphasage.

L'ellipse peut apparaître sous la forme d'un cercle ou d'un segment de droite conduisant à des états de polarisation particuliers.

### 3.2.1 Polarisation circulaire

C'est un cas particulier de la polarisation elliptique pour lequel les amplitudes  $A_x$  et  $A_y$  sont égales et la différence de phase  $\delta$  est égale à  $\pm\pi/2$ .

La polarisation circulaire peut également être droite ou gauche.

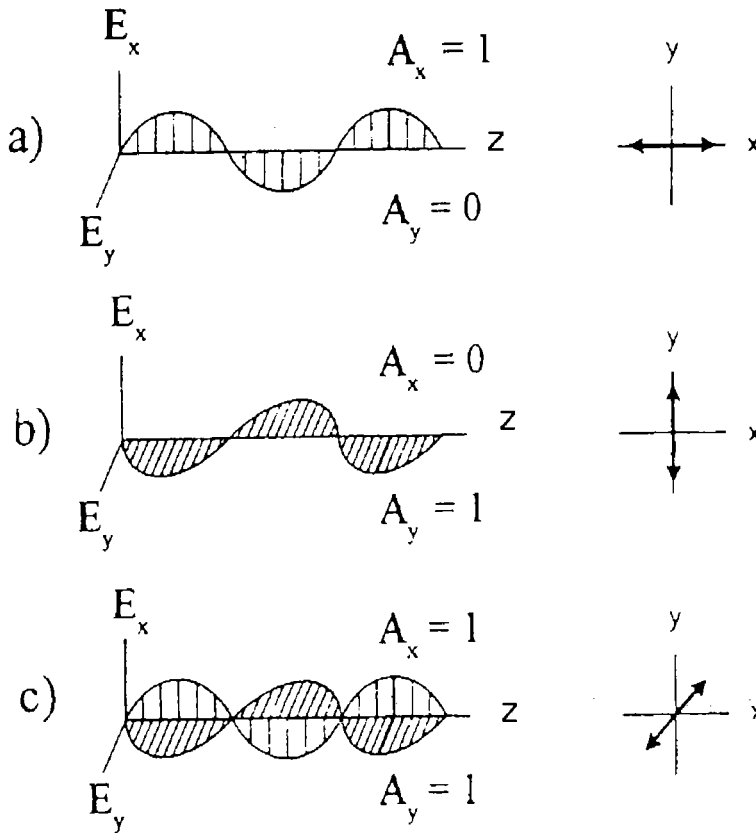
### 3.2.2 Polarisation rectiligne

La lumière est polarisée linéairement si les phases des deux composantes sont égales ou déphasées d'une valeur  $\pi$ . Le rapport des amplitudes  $A_x$  et  $A_y$  détermine l'orientation de la polarisation, figure (3.3).

L'état de polarisation rectiligne est représenté par le vecteur :

$$\vec{E} = A(\cos \Theta \vec{x} + \sin \Theta \vec{y}), \quad (3.4)$$

avec :  $A = A_x + A_y.$



**Figure 3.3:** Représentation d'une lumière polarisée rectilignement. a) le long de l'axe  $Ox$ ; b) le long de l'axe  $Oy$ ; c) avec une orientation de  $45^\circ$  par rapport à l'axe  $Ox$ .

## 3.3 Représentation matricielle de l'état de polarisation

### 3.3.1 Vecteurs de Jones d'une lumière elliptique

L'état de polarisation d'une lumière est entièrement déterminé par les amplitudes et les phases relatives des composantes de  $\vec{E}$ , on peut donc le représenter par une matrice colonne appelée vecteur de Jones :

$$\mathbf{E} = \begin{bmatrix} |E_x| e^{i\delta_x} \\ |E_y| e^{i\delta_y} \end{bmatrix}. \quad (3.5)$$

Le flux de l'onde peut s'obtenir en additionnant les carrés des amplitudes le long des deux directions orthogonales :

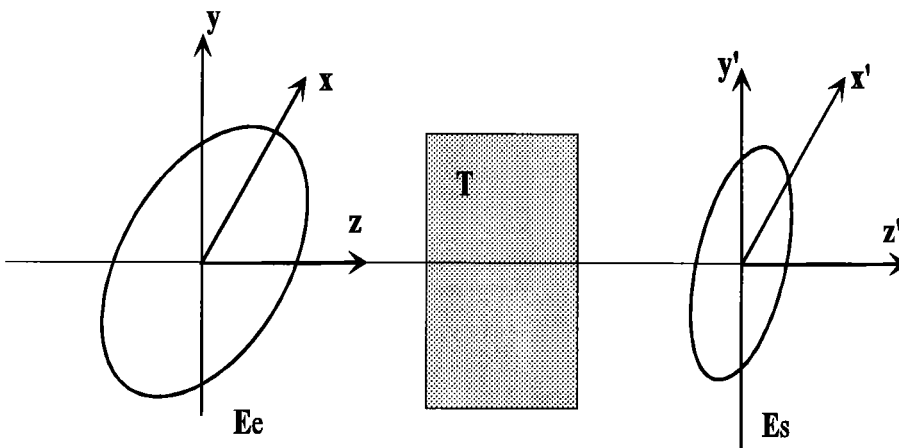
$$I = |E_x|^2 + |E_y|^2 \quad (3.6)$$

ou encore  $I = E^T E$

où  $E^T$  est la matrice adjointe de  $E$  (complexe conjuguée puis transposée). L'onde est dite normée si le flux est égale à l'unité :  $E^T E = 1$ .

### 3.3.2 Matrice de transfert d'un système optique

Soit un système optique,  $\vec{E}_e$  le vecteur de Jones de la lumière incidente et  $\vec{E}_s$  celui de la lumière émergente.



Il est possible d'écrire :

$$\vec{E}_s = T \cdot \vec{E}_e \quad (3.7)$$

où  $T$  représente la matrice de Jones du système ou matrice de transfert.

Si le système optique est composé de  $N$  éléments caractérisés chacun par une matrice de transfert, alors la formule (3.7) reste toujours valable de proche en proche, et on aura :

$$\vec{E}_s = T_N \cdot T_{N-1} \dots T_2 \cdot T_1 \cdot \vec{E}_e \quad (3.8)$$

On remarque que la première matrice du produit  $T_N$  est la matrice de transfert du dernier élément traversé.

### 3.3.3 Vecteur de Stokes

Un autre mode de représentation est celui proposé par Stokes. Dans ce cas, l'état de polarisation d'une onde quasi-monochromatique peut être décrit par quatre paramètres dits "paramètres de Stokes" qui ont les dimensions d'une puissance lumineuse :  $S_0, S_1, S_2, S_3$ .

Par définition, le vecteur de Stokes s'écrit :

$$\vec{S} = \begin{bmatrix} S_0 \\ S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{bmatrix} \quad (3.9)$$

où :

$$S_0 = \langle \mathbf{E}_x^2(t) \rangle + \langle \mathbf{E}_y^2(t) \rangle \quad (3.10)$$

$$S_1 = \langle \mathbf{E}_x^2(t) \rangle - \langle \mathbf{E}_y^2(t) \rangle \quad (3.11)$$

$$S_2 = 2 \langle \mathbf{E}_x(t)\mathbf{E}_y(t) \cos(\delta_y(t) - \delta_x(t)) \rangle \quad (3.12)$$

$$S_3 = 2 \langle \mathbf{E}_x(t)\mathbf{E}_y(t) \sin(\delta_y(t) - \delta_x(t)) \rangle \quad (3.13)$$

avec  $\langle \dots \rangle$  moyenne temporelle.

$S_0$  représente la puissance totale, toujours positive, qui est mesurée expérimentalement. Dans le cas d'une onde non polarisée, seul  $S_0$  est différent de 0 et on a, par conséquent :

$$\vec{S} = \begin{bmatrix} S_0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} \quad (3.14)$$

### 3.3.4 Matrice de Mueller d'un système optique

Nous avons vu qu'une lumière partiellement polarisée peut-être représentée par un vecteur de Stokes. Or les vecteurs et matrices de Jones ne conviennent pas pour représenter la propagation d'une lumière incomplètement polarisée à travers un système optique. De plus, elle ne conviennent pas non plus pour tenir compte d'une éventuelle dépolarisation introduite par le système lui-même.

Pour remédier à tous ces problèmes, il convient d'utiliser un autre type de matrice qui relie le vecteur de Stokes de la lumière incidente  $\vec{S}_e$  au vecteur de Stokes de la lumière

émergente  $\vec{S}_s$ . Il s'agit de la matrice de Mueller.

On a donc :

$$\vec{S}_s = M \cdot \vec{S}_e \quad (3.15)$$

Pour un système optique parfaitement polarisant (et seulement dans ce cas), il est possible de déduire la matrice de Mueller de celle de Jones.

On a :

$$M = \mathbf{A}(\mathbf{T}^* \otimes \mathbf{T})\mathbf{A}^{-1} \quad (3.16)$$

où :

$$\mathbf{A} = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 1 \\ 1 & 0 & 0 & -1 \\ 0 & 1 & 1 & 0 \\ 0 & i & -i & 0 \end{bmatrix} \quad (3.17)$$

$\mathbf{T}$  : matrice de Jones du système.

On peut citer comme exemple les matrices de Mueller d'éléments optiques parfaits, utilisées dans le montage qui va nous intéresser.

Pour un polariseur ou un analyseur on a :

$$\mathbf{M}_p = 1/2 \begin{bmatrix} 1 & 1 & 0 & 0 \\ 1 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (3.18)$$

Pour un échantillon isotrope ou anisotrope ayant la matrice de réflexion de Jones diagonale :

$$\mathbf{M}_S = \kappa \begin{bmatrix} 1 & -\cos 2\Psi & 0 & 0 \\ -\cos 2\Psi & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \sin 2\Psi \cos \Delta & \sin 2\Psi \sin \Delta \\ 0 & 0 & -\sin 2\Psi \sin \Delta & \sin 2\Psi \cos \Delta \end{bmatrix} \quad (3.19)$$

avec

$$\kappa = (R_p^2 + R_s^2)/2,$$

et  $\frac{R_p}{R_s} = \tan \Psi e^{i\Delta}$  (voir paragraphe 3.4).

La constante  $\kappa$  n'apparaîtra pas dans les calculs ultérieurs et sera implicitement comprise dans  $I_0$ .

Pour un échantillon quelconque ayant sa matrice de Jones non diagonale :

$$\mathbf{R} = \begin{bmatrix} R_{pp} & R_{ps} \\ R_{sp} & R_{ss} \end{bmatrix}, \quad (3.20)$$

la matrice de Mueller correspondante s'écrit [35] :

$$\mathbf{M}_S = \begin{bmatrix} M_{11} & M_{12} & M_{13} & M_{14} \\ M_{21} & M_{22} & M_{23} & M_{24} \\ M_{31} & M_{32} & M_{33} & M_{34} \\ M_{41} & M_{42} & M_{43} & M_{44} \end{bmatrix}, \quad (3.21)$$

où les éléments  $M_{ij}$  sont donnés par

$$\begin{aligned} M_{11} &= (l_{pppp} + l_{psps} + l_{spsp} + l_{ssss})/2 & M_{12} &= (l_{pppp} - l_{psps} + l_{spsp} - l_{ssss})/2 \\ M_{21} &= (l_{pppp} + l_{psps} - l_{spsp} - l_{ssss})/2 & M_{22} &= (l_{pppp} - l_{psps} - l_{spsp} + l_{ssss})/2 \\ M_{13} &= \operatorname{Re}(l_{ppps} + l_{spss}) & M_{14} &= \operatorname{Im}(l_{ppps} + l_{spss}) \\ M_{23} &= \operatorname{Re}(l_{ppps} - l_{spss}) & M_{24} &= \operatorname{Im}(l_{ppps} - l_{spss}) \\ M_{31} &= \operatorname{Re}(l_{ppsp} + l_{psss}) & M_{32} &= \operatorname{Re}(l_{ppsp} - l_{psss}) \\ M_{41} &= \operatorname{Im}(-l_{ppsp} - l_{psss}) & M_{42} &= \operatorname{Im}(-l_{ppsp} + l_{psss}) \\ M_{33} &= \operatorname{Re}(l_{pssp} + l_{ppss}) & M_{34} &= \operatorname{Re}(-l_{pssp} - l_{ppss}) \\ M_{43} &= \operatorname{Im}(-l_{pssp} - l_{ppss}) & M_{44} &= \operatorname{Re}(-l_{pssp} + l_{ppss}) \end{aligned}$$

avec

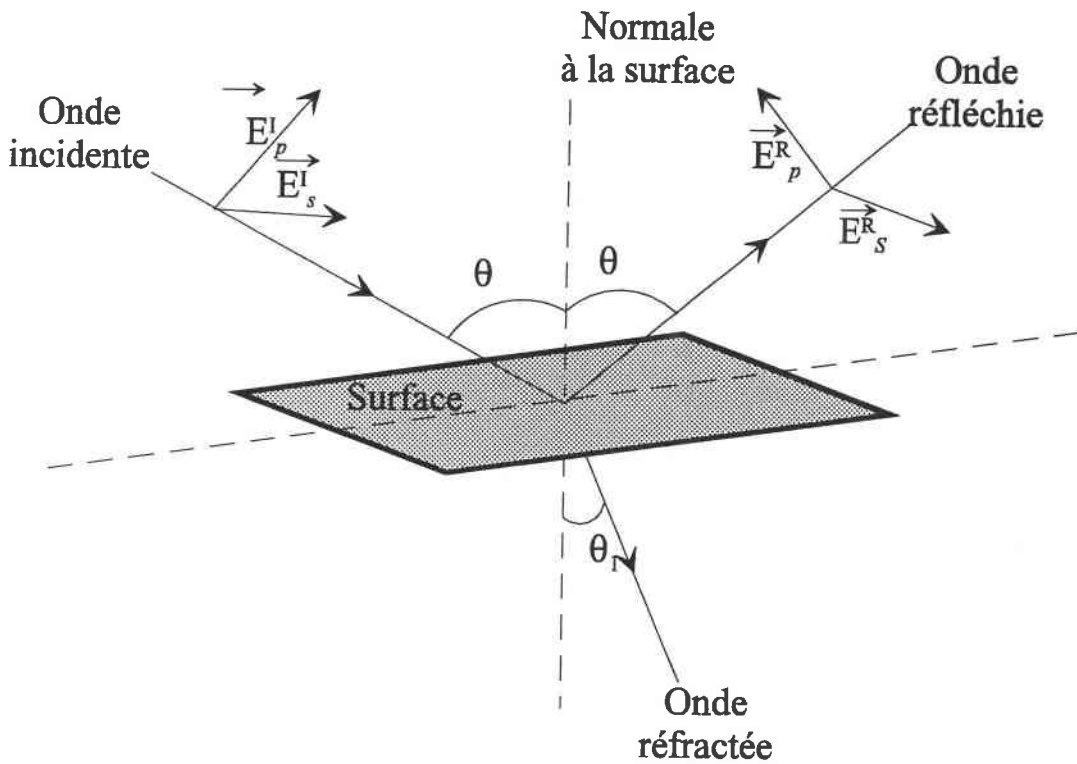
$$l_{abcd} = R_{ab}R_{cd}^* \quad \text{et} \quad a, b, c, d = p, s.$$

Le symbole \* représente le complexe conjugué.

### 3.4 Principes de l'ellipsométrie conventionnelle

Lorsqu'un faisceau lumineux se réfléchit sur une surface plane, son état de polarisation est modifié. Les deux composantes orthogonales du vecteur champ électrique  $\vec{E}$  caractérisant l'onde incidente sont notées  $E_p^i$  et  $E_s^i$ . Elles sont respectivement les composantes parallèles et perpendiculaires au plan d'incidence défini par le rayon incident et la normale à la surface.

Il en va de même pour les composantes du vecteur champ électrique de la lumière réfléchie notées  $E_p^r$  et  $E_s^r$



**Figure 3.4:** Réflexion et transmission d'une onde plane monochromatique sur une surface plane séparant les deux milieux 0 et 1.  $\theta$  et  $\theta_1$  sont, respectivement, les angles d'incidence et de réfraction.

La matrice de Jones relie ces composantes du vecteur champ électrique avant et après réflexion

$$\begin{bmatrix} E_p^R \\ E_s^R \end{bmatrix} = \mathbf{R}_s \begin{bmatrix} E_p^I \\ E_s^I \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} R_p & 0 \\ 0 & R_s \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_p^i \\ E_s^i \end{bmatrix} \quad (3.22)$$

La matrice de Jones  $\mathbf{R}_s$  est diagonale si le milieu est isotrope ou lorsque l'orientation de l'axe optique d'un cristal anisotrope se retrouve dans une situation particulière (par exemple l'axe optique normal à la surface).

Les coefficients de réflexion complexes  $R_p$  et  $R_s$  caractérisant la réflexion sont défini par les deux quantités suivantes

$$R_p = \frac{E_p^r}{E_p^i} = \frac{|E_p^r|}{|E_p^i|} e^{i(\delta_p^r - \delta_p^i)} = |r_p| e^{i\delta_p} \quad (3.23)$$



$$R_s = \frac{E_s^r}{E_s^i} = \frac{|E_s^r|}{|E_s^i|} e^{i(\delta_s^r - \delta_s^i)} = |r_s| e^{i\delta_s}, \quad (3.24)$$

leur module  $|R_p|$  et  $|R_s|$  représentent la modification de l'amplitude et leurs arguments,  $\delta_p$  et  $\delta_s$ , le changement de phase dû à la réflexion. Le changement de l'état de polarisation, qui résulte de la différence de comportement en amplitude et en phase des ondes  $p$  et  $s$ , peut alors être caractérisé par le rapport

$$\rho = \frac{R_p}{R_s} = \tan \Psi e^{i\Delta}, \quad (3.25)$$

avec

$$\tan \Psi = \left| \frac{R_p}{R_s} \right| \quad (\text{est le rapport des modules})$$

$$\Delta = \delta_p - \delta_s \quad (\text{est la différence de phase}).$$

Les angles  $\Psi$  et  $\Delta$  caractéristiques de la surface étudiée, sont appelés "angles ou paramètres ellipsométriques". Dans un milieu isotrope, ils ne dépendent que de la longueur d'onde  $\lambda$  et de l'angle d'incidence  $\theta$ ,

$$0 \leq \Psi \leq \frac{\pi}{2} \quad \text{et} \quad 0 \leq \Delta \leq 2\pi.$$

Le rapport  $\rho$ , en général complexe et de module différent de l'unité, c'est-à-dire que les deux composantes de la vibration rectiligne incidente sont différemment atténuées et différemment retardées par la réflexion.

La connaissance des phases et des amplitudes absolues n'est pas nécessaire, ce qui rend la mesure indépendante des fluctuations éventuelles de la source.

Cependant, la modélisation de l'échantillon est absolument nécessaire pour remonter aux constantes optiques à partir des mesures des angles ellipsométriques  $\Psi$  et  $\Delta$ . Les différents modèles généralement utilisés sont le substrat nu, une couche sur substrat et le cas d'un système multicouches sur substrat.

### 3.5 L'ellipsométrie généralisée

L'ellipsométrie est une technique optique indirecte. L'analyse des grandeurs mesurées en terme de constantes optiques des différentes strates composant l'interface étudiée est basée

sur une procédure mathématique appelée inversion des équations ellipsométriques. L'inversion des données expérimentales à partir d'un modèle optique de l'échantillon est un problème délicat. Il peut même être difficile à mettre en œuvre lorsque le système est anisotrope. En conséquence, beaucoup d'études ellipsométriques ont été restreintes aux systèmes ayant une matrice de Jones de réflexion diagonale tels que les systèmes isotropes ou lorsque l'orientation de l'axe optique d'un système anisotrope se retrouve dans une situation particulière (par exemple l'axe optique normal à la surface).

La technique utilisée pour surmonter ces limitations est l'ellipsométrie généralisée. Le terme "*ellipsométrie généralisée*" a été adopté par Azzam et Bashara [36] pour définir une application originale de l'ellipsométrie à la mesure de tous les éléments de la matrice de Jones normalisée comportant des éléments non diagonaux pour une structure anisotrope. Aujourd'hui, l'ellipsométrie généralisée se développe rapidement. Différents travaux ont été réalisés dans le domaine de la modélisation de la réponse ellipsométrique des systèmes complexes anisotropes [28, 37, 38] et dans le domaine instrumental [39, 40, 41].

Avec un échantillon anisotrope, la matrice de Jones reliant les composantes des vecteurs champ électrique a pour expression

$$\begin{bmatrix} E_p^R \\ E_s^R \end{bmatrix} = \mathbf{R}_s \begin{bmatrix} E_p^I \\ E_s^I \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} R_{pp} & R_{ps} \\ R_{sp} & R_{ss} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_p^I \\ E_s^I \end{bmatrix} \quad (3.26)$$

Contrairement à l'ellipsométrie classique où seules les coefficients  $R_{pp}$  et  $R_{ss}$  sont à considérer, l'ellipsométrie généralisée tient compte des quatre éléments de la matrice  $\mathbf{R}_s$ . L'équation (3.26) est considérée comme une transformation bilinéaire entre les rapports des amplitudes complexes de l'onde incidente et de l'onde réfléchie. La matrice de Jones dépendant de la structure du système optique et des orientations des axes optiques par rapport aux coordonnées du repère laboratoire, elle peut être symétrique ou antisymétrique, hermitienne ou antihermitienne. Ces éléments antidiagonaux peuvent être complètement différents ou simplement égaux à zéro (voir référence [42] et les références incluses). Physiquement, les éléments  $R_{ps}$  et  $R_{sp}$  correspondent au couplage entre les états p et s.

Dans ce mémoire nous nous intéressons à la réflexion de la lumière. Notons que les

considérations prises pour la réflexion sont aussi valables pour la transmission. Il suffit seulement dans le cas de la transmission de remplacer les éléments de la matrice de réflexion de Jones par leur équivalent à la transmission.

L'ellipsométrie généralisée consiste à définir et à déterminer trois coefficients de la matrice de Jones normalisée  $\rho_{pp}$ ,  $\rho_{ps}$  et  $\rho_{sp}$ . En fonction des angles ellipsométriques, ces rapports s'écrivent

$$\rho_{pp} = \frac{R_{pp}}{R_{ss}} = \tan \Psi_{pp} e^{i\Delta_{pp}} \quad (3.27)$$

$$\rho_{ps} = \frac{R_{ps}}{R_{ss}} = \tan \Psi_{ps} e^{i\Delta_{ps}} \quad (3.28)$$

$$\rho_{sp} = \frac{R_{sp}}{R_{ss}} = \tan \Psi_{sp} e^{i\Delta_{sp}} \quad (3.29)$$

Les éléments de la matrice de Jones normalisées dépendent de la longueur d'onde  $\lambda$ , de l'angle d'incidence  $\theta$  et de l'orientation de l'échantillon. En effet, dans le cas des matériaux anisotropes, l'orientation de l'échantillon est critique pour déterminer les coefficients de la matrice de Jones normalisée  $\rho_{pp}$ ,  $\rho_{ps}$  et  $\rho_{sp}$ .

Dans certaines positions particulières de l'axe optique de l'échantillon anisotrope (par exemple axe optique parallèle à la surface et au plan d'incidence), les éléments antidiagonaux sont égaux à zéro et le rapport  $\rho_{pp}$  donne les angles ellipsométriques classiques  $\Psi$  et  $\Delta$ .

Pour caractériser totalement la matrice de Jones comportant des éléments non diagonaux différents de zéro, la plupart des travaux effectués dans ce domaine utilisent le formalisme des matrices  $4 \times 4$  développé par Berreman [6] et Yeh [13]. Ce formalisme est basé sur des produits matriciels qui permettent de relier les ondes électromagnétiques de part et d'autre d'une interface et qui décrivent la propagation dans une couche. Cette méthode est surtout indispensable pour les structures multicouches anisotropes. Cependant, nous allons voir dans les chapitres 4 et 5, que pour caractériser un substrat anisotrope ou un système monocouche anisotrope, il n'est pas nécessaire d'avoir recours au formalisme matriciel  $4 \times 4$ .

### 3.6 Les différentes techniques de mesure

Il existe une multitude de montages pour mesurer la polarisation par réflexion. Ils comportent toujours une source lumineuse, un générateur d'état de polarisation, un système étudié, un analyseur d'état de polarisation et un détecteur d'intensité. On distingue principalement trois types d'ellipsomètres : l'ellipsomètre à annulation, l'ellipsomètre à modulation de phase et l'ellipsomètre à élément tournant. Ces techniques sont toutes décrites dans l'ouvrage de référence sur l'ellipsométrie édité par Azzam et Bashara [31].

#### 3.6.1 L'ellipsométrie à annulation

Cette technique est basée sur la caractérisation de la lumière réfléchie par la recherche d'un minimum du flux réfléchi. Ce montage, proposé par Drude [1], est encore largement utilisé du fait de sa simplicité. Il comprend : une source monochromatique, un polariseur, un compensateur (généralement une lame quart d'onde) et un analyseur. Le flux est nul lorsque

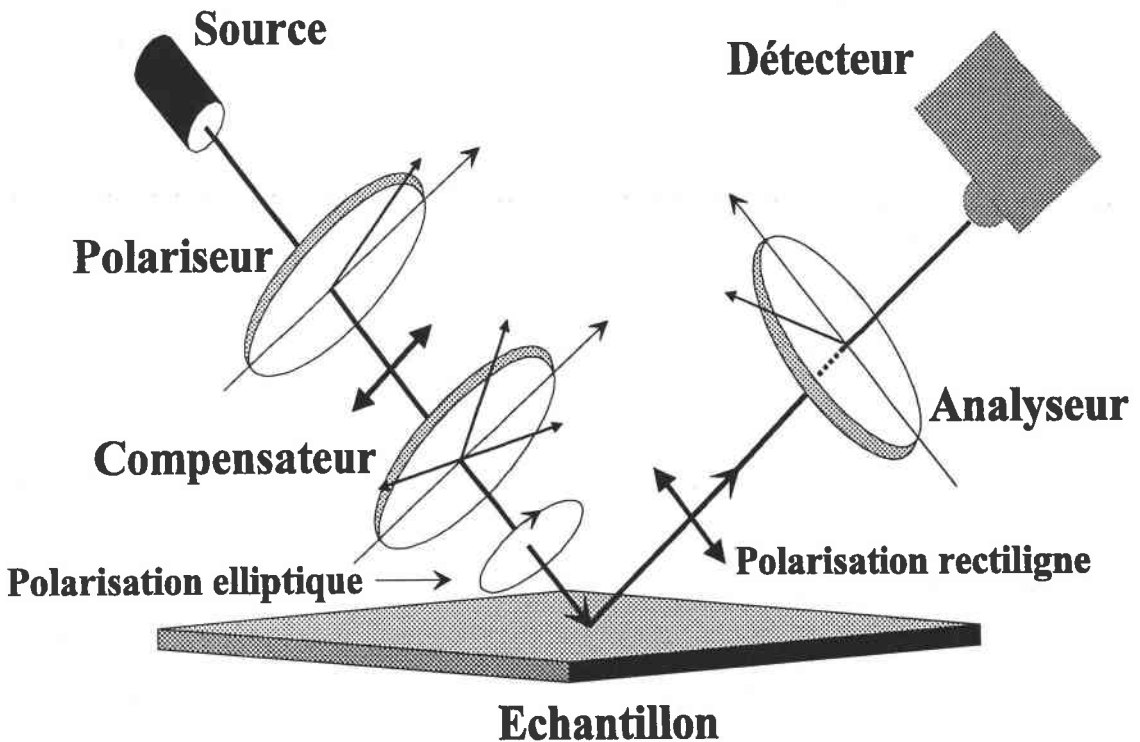


Figure 3.5: Schéma d'un ellipsomètre à extinction

la lame quart d'onde est orientée de manière à transformer la vibration elliptique réfléchie

par l'échantillon, en une vibration rectiligne, qui peut ensuite être éteinte par l'analyseur. Cette méthode simple et précise permet le calcul direct des angles  $\Psi$  et  $\Delta$ , cependant, elle est relativement lente, même si elle est automatisée (la recherche du minimum d'intensité limite la rapidité des mesures). De plus, l'emploi d'une lame quart d'onde ne permet pas au montage d'effectuer des mesures à plusieurs longueurs d'onde.

A la fin des années 60, grâce aux progrès réalisés en électronique et informatique, les ellipsomètres manuels à extinction ont été progressivement remplacés par des ellipsomètres automatiques à modulateur de phase ou à élément tournant.

### 3.6.2 L'ellipsomètre à modulateur de phase

Son principe est dû à Jasperson et Schnatterly [44]. Par rapport au montage d'un ellipsomètre classique (source, polariseur, compensateur, analyseur, détecteur), le compensateur est remplacé ici par modulateur photoélastique. Ce dernier consiste en un barreau de silice collé à un cristal de quartz piézoélectrique. L'excitation du cristal induit une onde stationnaire de contrainte uniaxiale dans le barreau de silice qui crée une biréfringence modulée  $\delta = A \sin(\Omega t)$ . L'amplitude  $A$  est proportionnelle à la tension d'excitation du cristal et inversement proportionnelle à la longueur d'onde.

Aucune caractéristique particulière n'est requise au niveau de la polarisation pour la source et le détecteur. De plus la fréquence de modulation élevée autorise une grande vitesse d'acquisition [45].

Cependant son utilisation requiert une électronique performante, capable d'assurer la saisie du signal et son traitement à une fréquence compatible avec la fréquence de modulation élevée (environ 50kHz). Le modulateur devra être calibré en fonction de la longueur d'onde, et la tension d'excitation asservie à celle-ci.

### 3.6.3 Les ellipsomètres photométriques à élément tournant

Dans un ellipsomètre, on appelle *élément tournant* un élément agissant sur la polarisation et tournant avec une vitesse de rotation uniforme autour de l'axe optique du système. Le polariseur, l'analyseur ou le compensateur peuvent jouer ce rôle, ce qui conduit à trois types d'ellipsomètre à élément tournant :

- 1) compensateur tournant (E.C.T) [46, 47, 48, 49],
- 2) analyseur tournant (E.A.T) [50, 51, 52, 53],

3) polariseur tournant (E.P.T) [54, 55, 56, 57, 58].

### L'ellipsomètre à analyseur ou à polariseur tournant

Le montage à élément tournant est décrit sur la figure (3.6). Le signal est d'abord

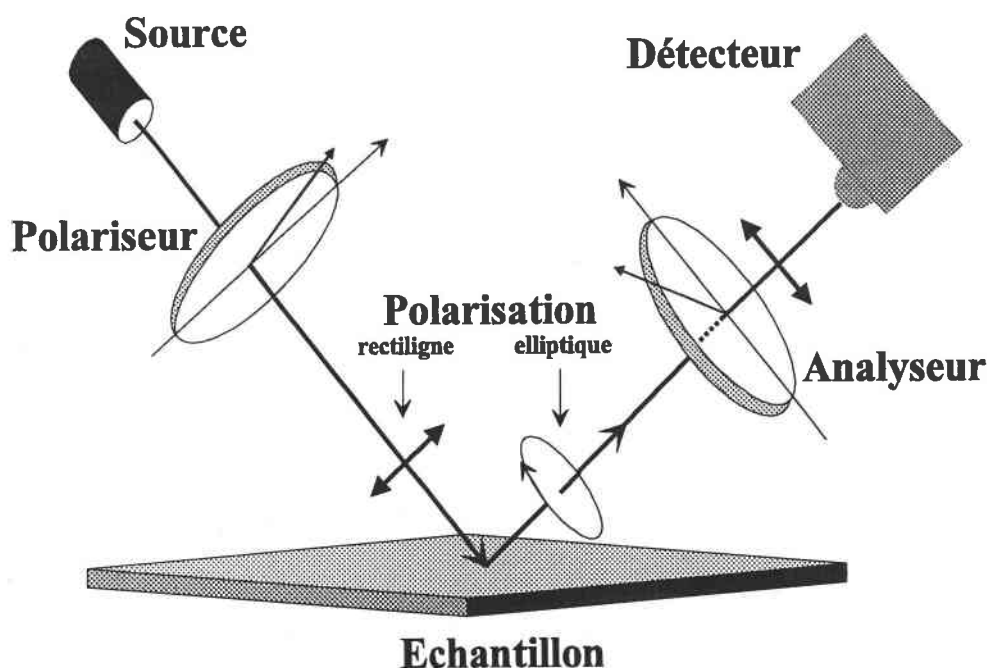


Figure 3.6: Schéma d'un ellipsomètre photométrique à élément tournant

échantillonné puis quantifié avant d'être analysé par la méthode de la transformée de Fourier discrète. Le flux recueilli par le détecteur est une fonction des azimuts du polariseur et de l'analyseur, des angles ellipsométriques et des caractéristiques de la source.

La suppression de la lame quart d'onde rend ces appareils achromatiques dans une large bande spectrale et une source de lumière blanche permet de réaliser des mesures spectroscopiques.

Ils présentent néanmoins des inconvénients, surtout l'indétermination sur le signe de  $\Delta$ . Le montage à polariseur tournant est sensible à la polarisation résiduelle de la source, tandis que pour le montage à analyseur tournant, il faut utiliser un détecteur insensible à l'état de polarisation.

Le temps d'acquisition d'une mesure ellipsométrique sur tout un domaine spectral dépend principalement du type de détecteur utilisé. En employant des monochromateurs

disposant d'un prisme et d'un réseau, il faut plusieurs minutes pour établir des spectres de  $\Psi$  et  $\Delta$  dans le domaine du visible par exemple. Par contre la nouvelle génération d'ellipsomètres spectroscopiques utilisant des détecteurs multiples ou des détecteurs à barrettes à photodiodes associés à un élément disperseur peuvent être utilisés pour des suivis en temps réel avec des temps d'acquisition de l'ordre de 20 millisecondes [59, 60].

### L'ellipsomètre à compensateur tournant

L'ellipsomètre à compensateur tournant permet de s'affranchir de toutes ces contraintes. Il permet de calculer les angles ellipsométriques sans indétermination sur le signe de  $\Delta$ . De plus il permet d'effectuer des mesures avec des temps d'acquisition très faibles (inférieurs à la seconde). Cependant, il ne peut être utilisé qu'à une longueur d'onde déterminée.

### Résumé

Il n'existe pas un ellipsomètre idéal. Chacun d'entre eux présente des avantages et des inconvénients. Le choix des montages possibles se restreint si l'on désire un ellipsomètre rapide, précis et spectroscopique.

Actuellement, d'autres aspects de l'ellipsométrie tels que l'ellipsométrie infrarouge, l'imagerie ellipsométrique et l'ellipsométrie résolue dans le temps (par exemple ellipsomètre de Mueller achromatique fonctionnant en temps réel [61]) font l'objet de développements importants et constitueront dans le futur de précieux outils pour la caractérisation de surfaces et de matériaux volumiques.

Notre laboratoire est équipé de trois ellipsomètres : un ellipsomètre à moduleur de phase, un ellipsomètre à compensateur tournant et un ellipsomètre spectroscopique à polariseur tournant à trois éléments (PRPSE). Dans le montage PRPSE, nous avons placé un polariseur avant la polariseur tournant pour éviter la contrainte de la polarisation résiduelle de la source.

Le montage PRPSE que nous avons choisi pour nos mesures spectroscopiques est détaillé dans le paragraphe (3.10).

## 3.7 Exploitation des angles ellipsométriques

### 3.7.1 Introduction

Pour un substrat isotrope, l'indice de réfraction  $n$  et l'indice d'absorption  $k$  sont reliés aux angles ellipsométriques par les deux relations suivantes :

$$n^2 - k^2 = \sin^2 \theta (1 + \tan^2 \theta \frac{\cos^2 2\Psi - \sin^2 2\Psi \sin^2 \Delta}{(1 + \sin 2\Psi \cos \Delta)^2}), \quad (3.30)$$

$$2nk = \sin^2 \theta \tan^2 \theta \frac{\sin 4\Psi \sin \Delta}{(1 + \sin 2\Psi \cos \Delta)^2}. \quad (3.31)$$

La mesure des angles ellipsométriques  $\Psi$  et  $\Delta$ , à une longueur d'onde et à un angle d'incidence  $\theta$ , est suffisante pour déterminer deux grandeurs optiques inconnues (indice de réfraction, absorption par exemple). Pour un système monocouche isotrope, le calcul des inconnues, en particulier l'épaisseur, peut même être effectué dans certains cas d'une manière analytique.

Par contre pour un milieu anisotrope uniaxe, une seule mesure est insuffisante pour déterminer deux indices de réfraction complexes  $N_o$  et  $N_e$ , c'est-à-dire quatre paramètres optiques réels ( $n_o, n_e, k_o$  et  $k_e$ ). Même pour un substrat uniaxe transparent, une seule mesure de  $\Psi$  et  $\Delta$  ne permet pas d'obtenir les valeurs de  $n_o$  et  $n_e$  [62].

La détermination, par le calcul, d'une ou deux grandeurs physiques caractéristiques de la surface étudiée à partir des mesures des angles ellipsométriques  $\Delta$  et  $\Psi$  est un problème difficile, appelé quelquefois problème de l'inversion des équations ellipsométriques. Sa résolution nécessite l'élaboration pour chaque situation particulière, d'un modèle qui relie les angles ellipsométriques aux grandeurs physiques concernées.

### 3.7.2 Relations entre les angles ellipsométriques et les constantes optiques dans un milieu anisotrope uniaxe

Les relations entre les angles ellipsométriques et les constantes optiques sont déterminées à partir des coefficients de Fresnel. Dans l'annexe B, nous nous sommes intéressés à la détermination des angles ellipsométriques selon l'orientation de l'axe optique; nous avons calculé  $\tan \Psi$  et  $\cos \Delta$  pour les cas suivants :

- axe optique perpendiculaire à l'interface air-substrat uniaxe,
- axe optique parallèle à l'interface air-substrat uniaxe,



- axe optique parallèle à l'interface et au plan d'incidence ( $\varphi = 0$ ),
- axe optique parallèle à l'interface et perpendiculaire au plan d'incidence ( $\varphi = \Pi/2$ ).

Le détail de ces calculs est regroupé dans l'annexe B. L'examen des formules reliant les paramètres ellipsométriques aux constantes optiques, montre que les équations ellipsométriques reliant les mesures aux paramètres inconnus du cristal uniaxe sont compliquées. Il est alors impossible de les résoudre de manière analytique et il faut utiliser une méthode numérique pour déterminer la solution. D'autre part une seule mesure ne permet pas d'accéder aux grandeurs physiques caractéristiques d'un substrat anisotrope.

D'une manière générale, pour résoudre ce type de problème numériquement, il faut que le nombre de paramètres à déterminer à chaque longueur d'onde soit inférieur au nombre de points saisis à chaque longueur d'onde. Ceci est accessible par la multiplicité des conditions expérimentales de mesures. C'est-à-dire, en effectuant des mesures par variation des paramètres (longueur d'onde, angle d'incidence, l'orientation de l'échantillon) intervenant dans les expressions des coefficients de Fourier ou les angles ellipsométriques .

C'est pourquoi nous avons réalisé un programme de simulation permettant de prévoir le comportement des paramètres ellipsométriques en fonction de l'angle d'incidence ou d'une autre variable.

## 3.8 Exemples de simulation des angles ellipsométriques

### 3.8.1 Variation de l'angle d'incidence

On considère un substrat anisotrope uniaxe avec l'axe optique parallèle à la surface. Dans le but de calculer numériquement les variations des angles ellipsométriques en fonction de l'angle d'incidence, nous avons choisi quatre orientations différentes de l'axe optique par rapport au plan d'incidence :

- $\varphi = 0^\circ$  : axe optique parallèle au plan d'incidence,
- $\varphi = 90^\circ$  : axe optique perpendiculaire au plan d'incidence,
- axe optique incliné d'un angle azimutal de  $30^\circ$  puis de  $50^\circ$  par rapport au plan d'incidence.

Sur la figure (3.7) sont présentées les variations de  $\tan \Psi$  et  $\cos \Delta$  en fonction de l'angle d'incidence  $\theta$ . Pour ce calcul, nous avons utilisé les valeurs des indices complexes obtenues pour  $\text{HgI}_2$  à la longueur d'onde  $\lambda = 0,49 \mu\text{m}$ ,  $N_o = 2,724 - i0,454$  et  $N_e = 2,523 - i0,375$ . On dispose d'une bonne sensibilité et des variations importantes des valeurs de  $\cos \Delta$  dans la plage angulaire autour de  $\theta = 70^\circ$ . Cet angle correspond approximativement à l'angle de Brewster  $\theta_B$  dans un substrat isotrope transparent (par exemple si l'indice de réfraction du milieu est  $N_o = 2,6$ , l'angle  $\theta_B$  égale à  $68,96$ ). Cependant, pour les autres angles d'incidences, les valeurs de  $\cos \Delta$  sont voisines de  $\pm 1$ . Ceci rend les spectres ellipsométriques mesurés par un ellipsomètre à polariseur tournant ou à analyseur tournant difficiles à exploiter. Les erreurs sur les mesures sont importantes lorsque le changement de phase dû à la réflexion est proche de  $0$  ou  $180^\circ$ .

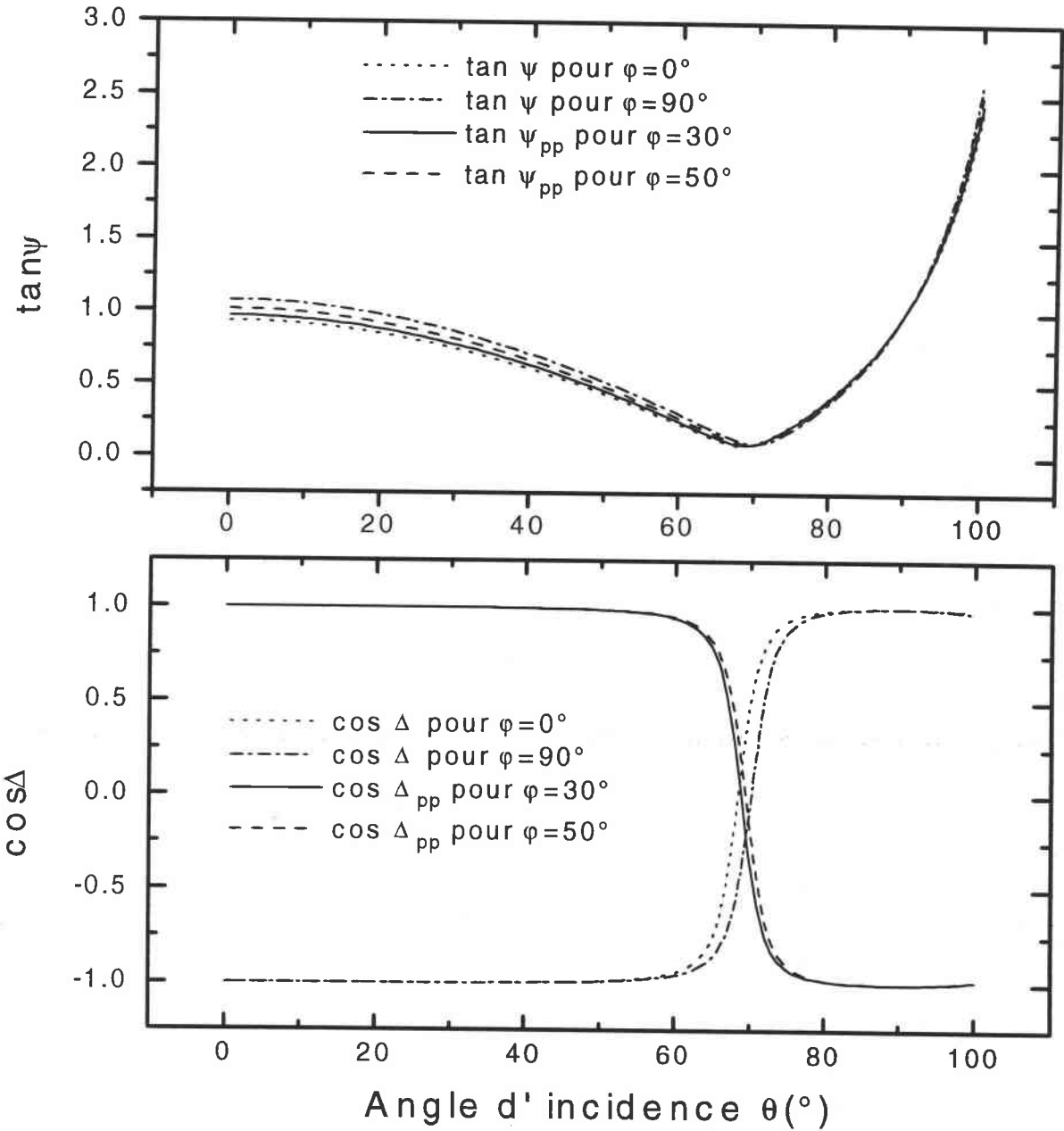
### 3.8.2 Variation de l'angle azimutal

Sur la figure (3.8) sont représentées les angles ellipsométriques généralisés en fonction de l'azimut  $\varphi$  à l'angle d'incidence  $\theta = 70^\circ$  et à la longueur d'onde  $\lambda = 0,49 \mu\text{m}$ . Nous avons remarqué que ces paramètres généralisés varient périodiquement avec l'azimut  $\varphi$ . En effet,  $\tan \Psi_{ps}$  est périodique de période  $90^\circ$  et  $\tan \Psi_{pp}$ ,  $\cos \Delta_{pp}$  et  $\cos \Delta_{ps}$  ont une périodicité de  $180^\circ$ . Ceci peut être un moyen pratique pour détecter l'axe optique avec précision.

Après avoir simulé des spectres ellipsométriques pour différents angles d'incidence  $\theta$  et azimuts  $\varphi$ , nous avons testé plusieurs procédures pour extraire les indices complexes d'un substrat anisotrope. La conclusion de ces tests d'inversion numérique se résume en deux points :

- si l'angle azimutal  $\varphi$  est différent de  $0^\circ$  et de  $90^\circ$ , alors nous pouvons déterminer les indices de réfraction complexes d'un substrat uniaxe en effectuant les mesures uniquement à un seul angle d'incidence et en tournant l'échantillon autour de la normale à sa surface,
- si l'azimut  $\varphi$  est égale à  $0^\circ$  ou  $90^\circ$ , les mesures doivent être effectuées au moins à deux angles d'incidence.

Le détail de ces méthodes est expliqué dans la partie d'exploitation des mesures (chapitres 4 et 5).



**Figure 3.7:** Paramètres ellipsométriques calculés pour un cristal uniaxe pour les azimuts ( $\varphi = 0, 30^{\circ}, 50^{\circ}$  et  $90^{\circ}$ ) en fonction de l'angle d'incidence à  $\lambda = 0,49 \mu\text{m}$  avec  $N_o = 2,724 - i0,454$  et  $N_e = 2,523 - i0,375$ . L'indice du milieu ambiant est  $n=1$ .

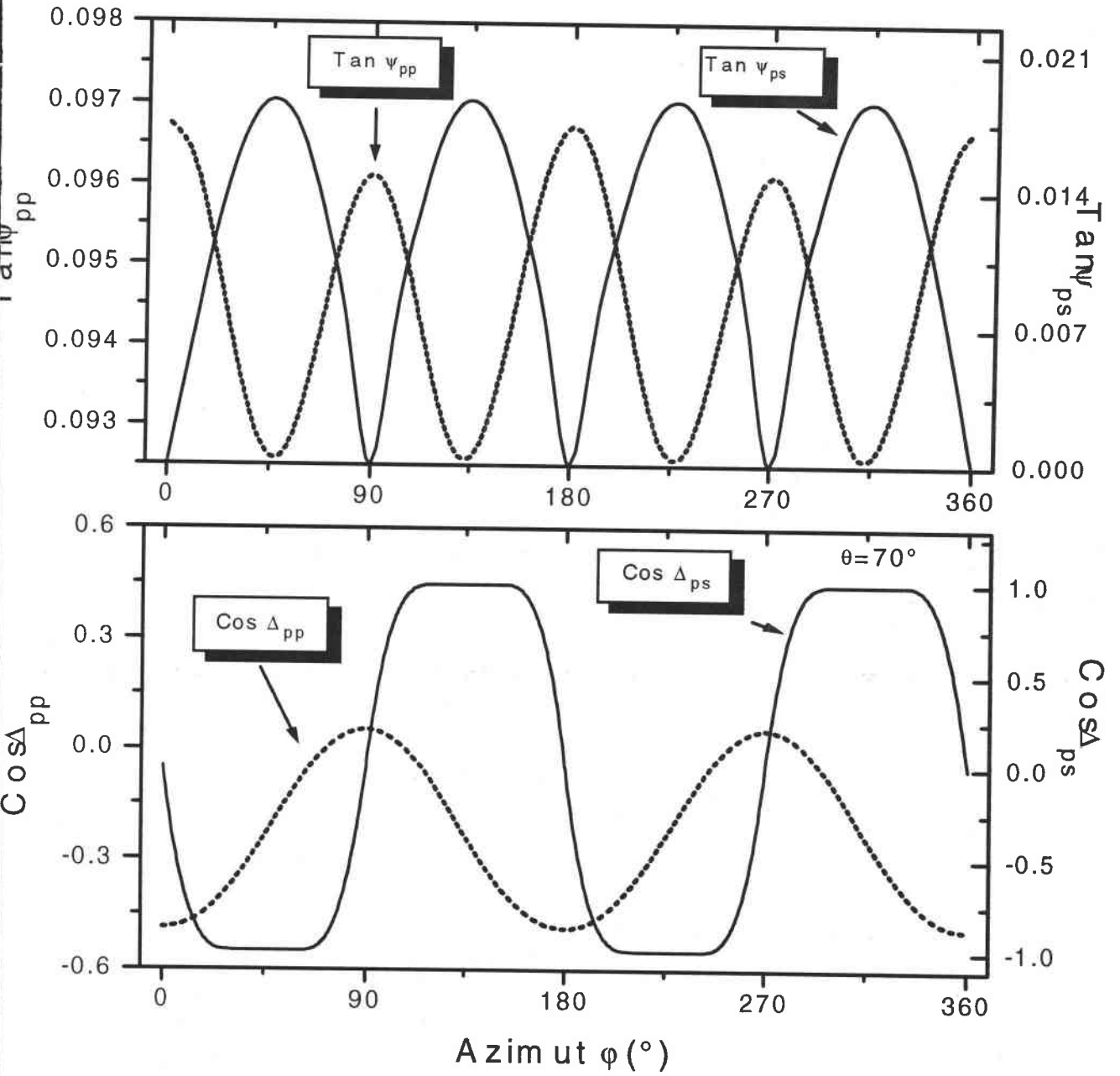


Figure 3.8: Paramètres ellipsométriques généralisés calculés pour un cristal uniaxe en fonction de l'azimut  $\varphi$  à  $\lambda = 0,49\mu\text{m}$

### 3.9 Méthodes de calcul numérique

L'exploitation des mesures ellipsométriques consiste à remonter aux caractéristiques d'un échantillon en ajustant les paramètres d'un modèle théorique jusqu'à minimiser, voir annuler l'écart entre les points de mesure et les points simulés.

Généralement deux algorithmes de minimalisation sont utilisés, soit l'algorithme de régression non linéaire, soit l'algorithme d'inversion point par point. Le premier permet d'exploiter les mesures ellipsométriques dans leur ensemble. Lorsque les quantités mesurées sont les grandeurs  $\tan \Psi$  et  $\cos \Delta$ , la fonction préconisée pour ce type de problème est  $\chi^2$  (appelée parfois critère de qualité) définie par :

$$\chi^2 = \frac{1}{2n - m - 1} \sum_{i=1}^n ([\tan \Psi_i^e - \tan \Psi_i^c]^2 + [\cos \Delta_i^e - \cos \Delta_i^c]^2), \quad (3.32)$$

où  $n$  est le nombre de mesures et  $m$  le nombre de paramètres. Les indices  $e$  et  $c$  indiquent respectivement les valeurs expérimentales et théoriques de la  $i^{\text{me}}$  mesure.

Le second algorithme permet l'exploitation des spectres ellipsométriques en chaque point de mesure. Il consiste à rechercher pour chaque longueur d'onde de mesure  $\lambda_i$ , les inconnus annulant l'écart entre les valeurs théoriques et expérimentales des paramètres ellipsométriques.

Généralement les algorithmes de régression et d'inversion point par point sont réalisés par deux techniques de minimalisation :

- la méthode Simplex [63], qui présente l'avantage d'avoir la possibilité de paramétrer l'algorithme (bornes minimum ou maximum des inconnus) et en plus il ne nécessite pas le calcul des dérivées partielles des paramètres de la fonction à minimiser;
- la méthode de Levenberg-Marquardt [64], converge plus rapidement vers la solution avec un nombre plus faible d'itérations et elle fournit les coefficients de corrélation.

Pour ces deux méthodes, il faut imposer des valeurs initiales aux grandeurs inconnues. Le choix des valeurs initiales est primordial puisque le programme pourra converger ou non vers les solutions suivant les valeurs initiales proposées. En particulier, l'algorithme Levenberg-Marquardt peut facilement converger vers un minimum local lorsque le point de départ est trop éloigné du minimum recherché. Pour montrer l'importance du choix des valeurs initiales nécessaires pour le démarrage du calcul, nous donnons deux exemples simulés de calcul du  $\chi^2$ .

Sur la figure (3.9), la somme  $\chi^2$  est calculée à partir de la différence des spectres théoriques des paramètres ellipsométriques  $\tan \Psi$  et  $\cos \Delta$  d'une couche de silice sur du silicium par rapport à celui d'une couche de  $0,5 \mu\text{m}$  de silice prise comme référence. La courbe montre qu'une valeur initiale comprise entre  $0,4$  et  $0,6 \mu\text{m}$  aboutit à la bonne solution; dans les autres cas, le calcul s'arrête dans un minimum local et donne une solution erronée. Dans ce type de configuration, il est nécessaire d'avoir de bonnes estimations des quantités caractéristiques de l'échantillon étudié.

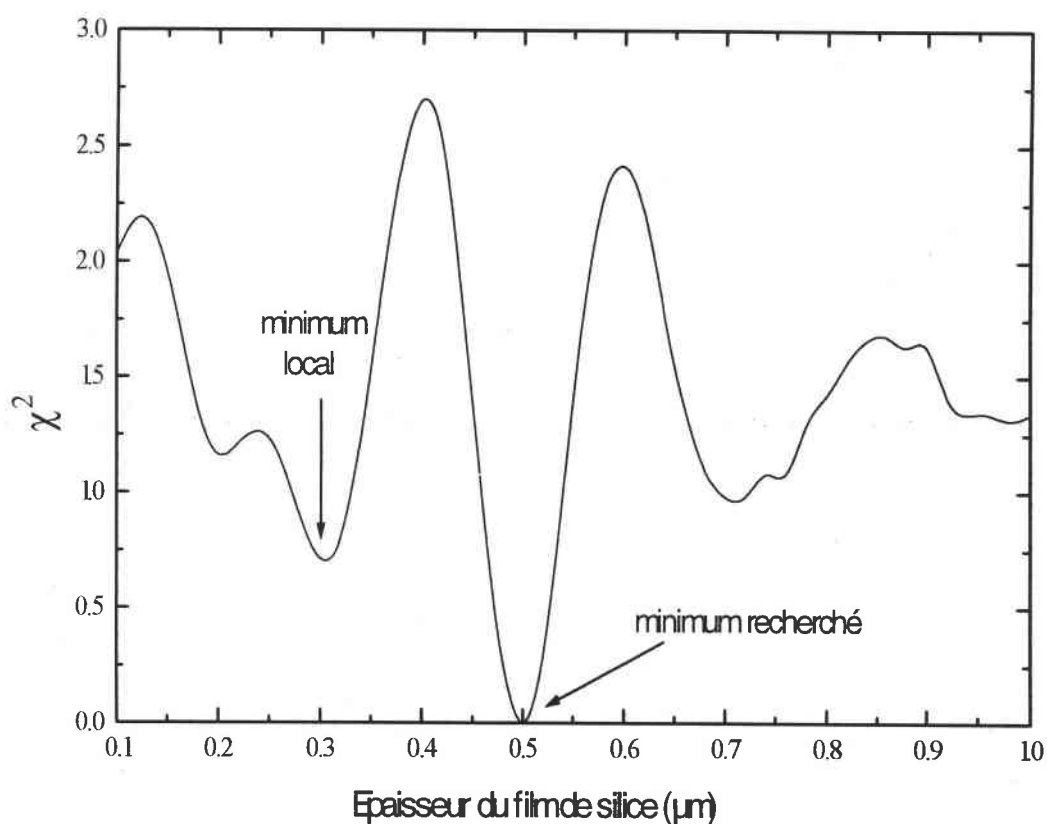
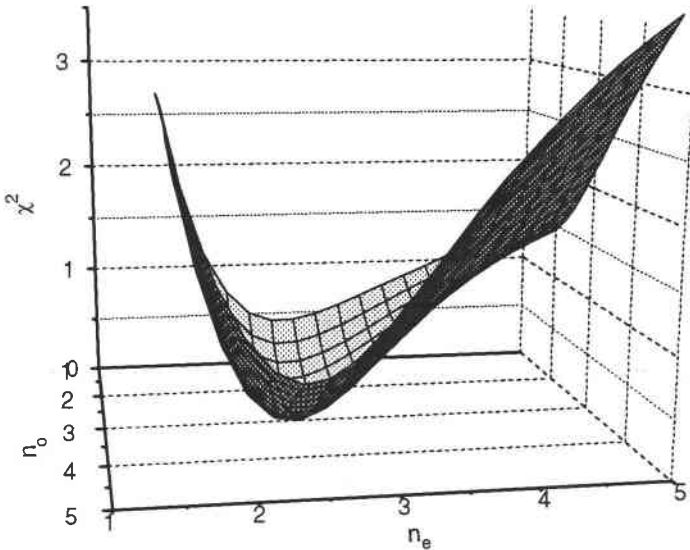


Figure 3.9: Variation de  $\chi^2$  en fonction de l'épaisseur de silice.

Sur la figure (3.10), une seule position du minimum a été trouvée et donne les valeurs recherchées. La somme  $\chi^2$  de cette figure est calculée à partir de la différence des spectres théoriques des coefficients de Fourier d'un substrat uniaxe transparent en faisant varier les indices ordinaire  $n_o$  et extraordinaire  $n_e$  par rapport à celui dont les indices  $n_o = 2,73$  et  $n_e = 2,53$  sont pris comme référence. Dans ce cas, les algorithmes d'inversion sont peu sensibles aux valeurs initiales, il suffit de fixer les limites des valeurs indices entre 1 et 5. Il se peut qu'il existe un minimum local au delà de la valeur maximale 5 fixée pour  $n_o$  et  $n_e$ , mais l'algorithme converge vers le vrai minimum recherché si les bornes minimums des inconnus  $n_o$  et  $n_e$  sont fixés à 1.



**Figure 3.10:** Variation de  $\chi^2$  en fonction des indices ordinaire et extraordinaire d'un substrat anisotrope.

En résumé, les valeurs de départ nécessaires pour initialiser les paramètres recherchés sont critiques pour assurer une bonne convergence de l'algorithme itératif de minimisation. Il est donc utile d'avoir une connaissance qualitative des caractéristiques de l'échantillon.

D'une manière générale, plus l'information expérimentale est riche plus le risque de converger vers un minimum local est réduit.

## 3.10 Présentation de l'ellipsomètre à polariseur tournant à trois éléments

### 3.10.1 Introduction

L'ellipsomètre spectroscopique à polariseur tournant à trois éléments [65, 66] a été réalisé à partir d'éléments fournis par la société SOPRA (deux moteurs pas à pas, le monochromateur, l'électronique de commande des moteurs et de comptage ainsi que le programme de gestion de ces éléments, écrit en Visual Basic).

L'ellipsomètre (PRPSE) permet de réaliser des spectres ellipsométriques en éliminant les perturbations des mesures dues à la polarisation résiduelle de la source.

Cependant, le temps d'acquisition d'un spectre (généralement quelques minutes) ne permet pas des suivis de phénomènes surfaciques à évolution rapide.

### 3.10.2 Description du montage PRPSE

Le schéma de principe de PRPSE est indiqué sur la figure (3.11). La source lumineuse est une lampe à arc Xénon haute pression de 75 W (de faible puissance mais de très forte luminance), à polarisation résiduelle très faible. Elle émet dans tout le spectre visible, du proche ultraviolet au proche infrarouge (de  $0,3\mu\text{m}$  à  $1\mu\text{m}$ ) [67]. Pour aligner parfaitement les différents éléments optiques du montage, on substitue au laser He-Ne la lampe Xénon à l'aide d'un jeu de miroirs.

Un faisceau parallèle est créé à l'aide d'un achromat en silice et de diaphragmes. Leur diamètre et leur espacement conditionnent la divergence du faisceau. Nous utilisons des diaphragmes de 1,5 mm de diamètre, la divergence du faisceau est réduite à 0,028 degré. Le rayon traverse un premier polariseur fixe. La précision de positionnement du polariseur est de 0,01 degré. Le but de ce polariseur est d'imposer une polarisation linéaire au faisceau incident et ainsi d'éliminer l'influence de toute polarisation résiduelle de la source.

Le faisceau est ensuite modulé par un polariseur tournant monté sur une platine dotée d'un moteur pas à pas tournant avec une vitesse de rotation de 10 tours/seconde.

Le rayon se réfléchit ensuite sur l'échantillon placé verticalement sur un goniomètre. Puis il traverse un analyseur monté sur une platine munie d'un moteur pas à pas. Les deux polariseurs et l'analyseur sont de types "Glazebrook". Le positionnement et le contrôle du polariseur tournant et de l'analyseur sont commandés par ordinateur.



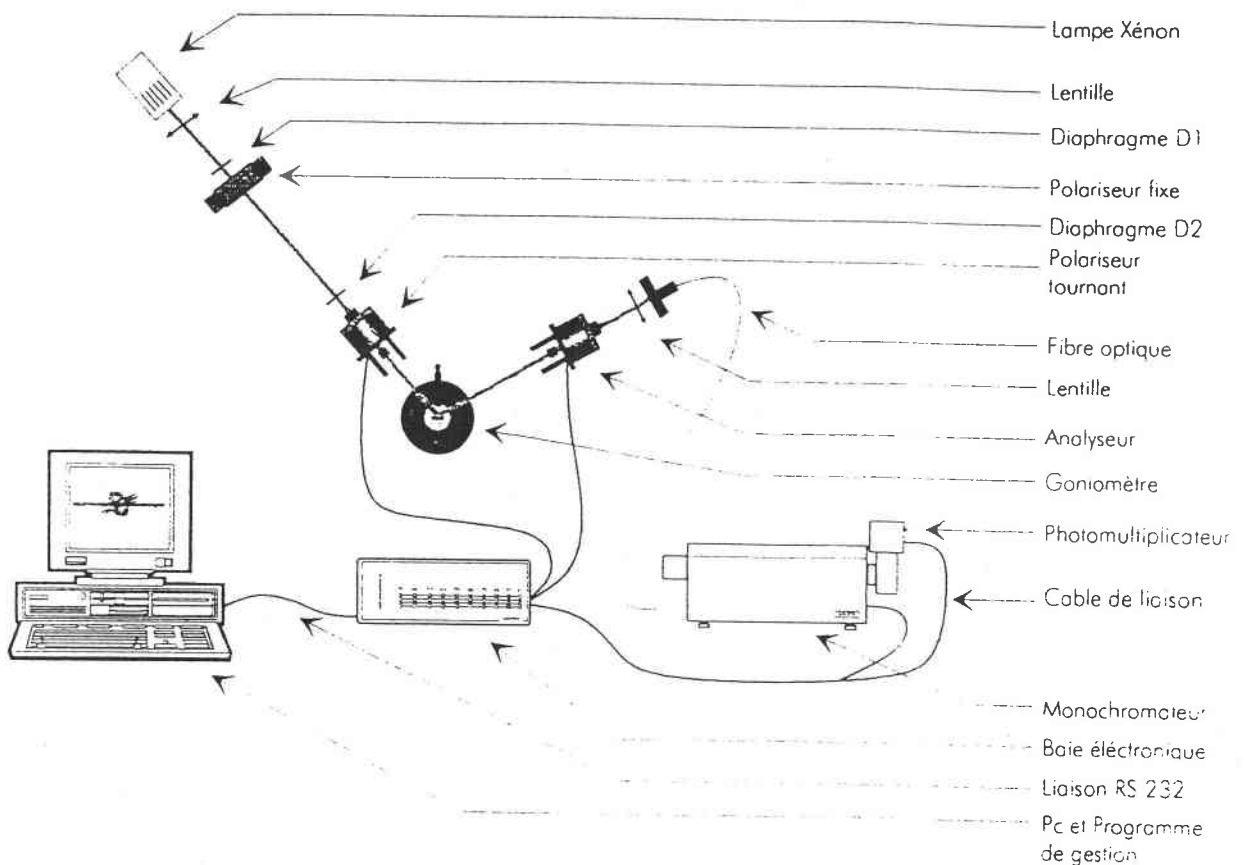


Figure 3.11: Schéma du montage de l'ellipsomètre spectroscopique (PRPSE)

A la sortie de l'analyseur, le faisceau est réfléchi et focalisé sur une fibre optique. Elle amène le faisceau jusqu'au système de détection. Afin de centrer le rayon sur l'entrée de la fibre optique, deux systèmes sont possibles : utiliser soit un achromat de courte focale soit un miroir concave. Nous avons utilisé ce dernier pour pouvoir effectuer des mesures au dessous de la longueur d'onde 400 nm.

Le système de détection comprend un double monochromateur [67], composé d'un réseau et d'un prisme, couplé à un photomultiplicateur [68] et d'une baie contenant l'électronique de comptage et de commande des différents moteurs. Le principe du monochromateur est indiqué sur la figure (3.12). Le photomultiplicateur, utilisé comme compteur de photons, fonctionne de l'ultraviolet jusqu'au proche infrarouge ( $0,250\mu\text{m}$  à  $0,900\mu\text{m}$ ). Ces photons sont sources d'impulsions électriques qui sont comptabilisées dans huit compteurs et cela par demi-tour. Chaque compteur est donc incrémenté pendant un seizième de tour du polariseur

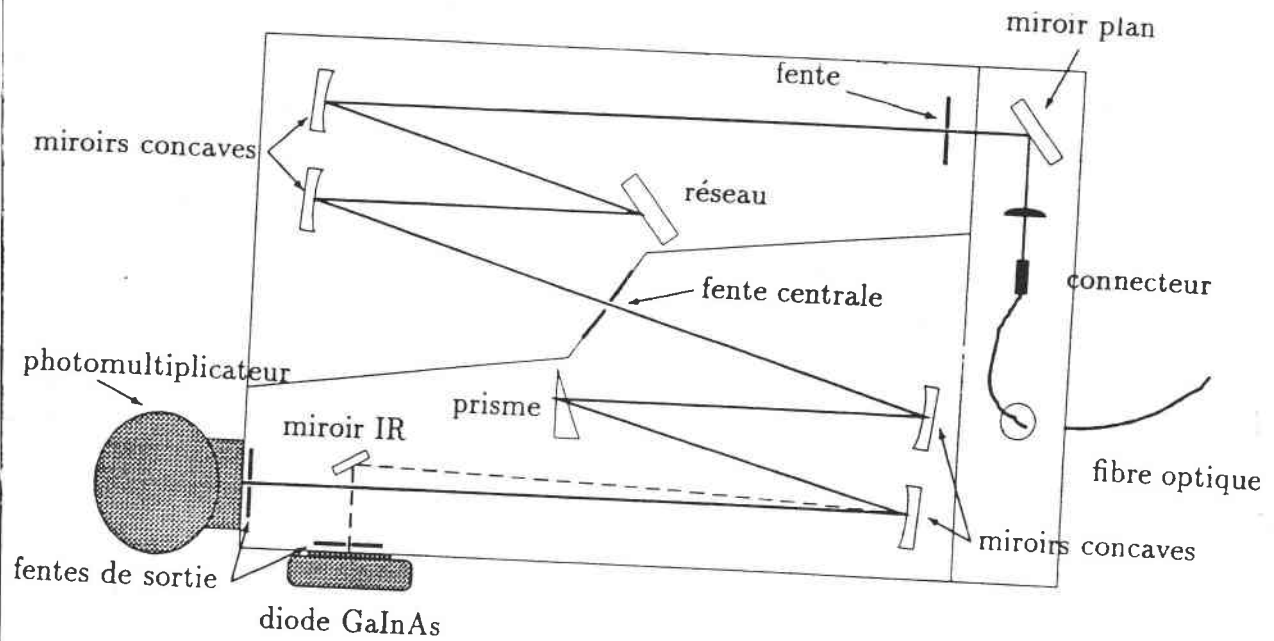


Figure 3.12: Principe d'un double monochromateur réseau prisme.

tournant. Les sommes recueillies dans chaque compteur permettent d'aboutir aux coefficients de Fourier grâce à une transformation de *Hadamard* (voir annexe A).

Nous disposons également d'un détecteur infrarouge (photodiode InGaAs; 0,8 à 1,7  $\mu\text{m}$ ) monté à la sortie du monochromateur. Il est possible de sélectionner l'un ou l'autre des détecteurs afin d'étendre la plage de travail. Dans cet objectif, les polariseurs utilisés sont de type Glazbrook [27] en calcite, possédant l'avantage d'absorber peu de lumière et de polariser parfaitement dans un domaine spectral étendu (0,22 $\mu\text{m}$  à 1,5 $\mu\text{m}$ ). Le monochromateur et l'électronique de mesure et de commande sont pilotés par l'ordinateur.

## 3.11 Expression du flux lumineux

### 3.11.1 Introduction

L'ellipsométrie photométrique à élément tournant détermine les angles ellipsométriques à partir du flux lumineux détecté. Il existe deux formalismes mathématiques pour calculer les intensités lumineuses : celui de *Jones* et celui de *Stokes-Mueller*.

Le calcul à partir des matrices de Jones donne l'amplitude du champ et il faut multiplier par le complexe conjugué pour obtenir le flux. Si le calcul à partir des matrices de Jones permet de connaître la phase absolue du vecteur champ électrique, il n'est par contre plus possible de traiter la lumière partiellement polarisée ou de tenir compte dans les calculs d'une

éventuelle dépolarisation introduite par le système lui-même.

Les matrices de Mueller permettent de réaliser directement le calcul des flux d'une lumière totalement ou partiellement polarisée.

Dans le cas d'un milieu isotrope ou anisotrope possédant une matrice de réflexion diagonale, nous avons calculé le flux lumineux reçu par le détecteur par la méthode de Stokes-Mueller. Pour un milieu anisotrope avec la matrice de réflexion non diagonale, le calcul du flux lumineux a été développé par le formalisme de Jones (voir chapitre 5).

### 3.11.2 Échantillon isotrope ou anisotrope avec la matrice de réflexion diagonale

Le vecteur de Stokes  $\vec{S}_f$  de la lumière reçue par le détecteur s'obtient en multipliant le vecteur de Stokes incident  $\vec{S}_i$  par l'ensemble des matrices de Mueller des éléments constituant l'ellipsomètre (les éléments optiques sont supposés parfaits) :

$$\vec{S}_f = \{R^{-1}(A)M_A R(A)\} M_s \{R^{-1}(P_t)M_{P_t} R(P_t)\} \{R^{-1}(P)M_P R(P)\} \vec{S}_i, \quad (3.33)$$

$R(\beta)$  est la matrice de rotation d'angle  $\beta$ .  $M_A$ ,  $M_s$ ,  $M_{P_t}$  et  $M_P$  sont respectivement les matrices de Mueller de l'analyseur, de l'échantillon, du polariseur tournant et du polariseur fixe.  $A$ ,  $P_t$  et  $P$  sont les angles que font les axes de transmission respectifs avec l'axe  $Ox$  du repère de référence, et sont comptés positivement dans le sens trigonométrique par rapport au plan d'incidence en regardant dans le faisceau (les conventions utilisées dans l'ensemble de ce mémoire sont celles proposées par Mueller, au congrès de NEBRASKA, complétées par celles de Hauge, Mueller, et Smith [69, 70]).

Le flux est égal à la composante  $\vec{S}_0$  du vecteur de Stokes  $\vec{S}_f$ . Il est obtenu en multipliant  $S_f$ , à gauche, par le vecteur ligne  $(1,0,0,0)$ . Lorsque la lumière incidente n'est pas polarisée  $S_i$  est de la forme  $(1,0,0,0)$ . A la sortie de l'analyseur  $\vec{S}_f$  s'écrira donc :

$$\vec{S}_f = \{M_A R(A)\} M_s \{R^{-1}(P_t)M_{P_t} R(P_t)\} \{R^{-1}(P)M_P\} \vec{S}_i, \quad (3.34)$$

avec

$$\vec{S}_i = \{I_0, 0, 0, 0\}, \quad (3.35)$$

représente le vecteur de Stokes de la lumière incidente.

Le deuxième polariseur, tourne à la vitesse angulaire  $\Omega = 2\pi f$ , et le flux transmis devient une fonction périodique de période  $\frac{2\pi}{\Omega}$ . On peut le décomposer en série de Fourier

$$I(t) = I_0 \left[ a_0 + \sum_{n=1}^{\infty} (a_{nc} \cos n\Omega t + a_{ns} \sin n\Omega t) \right], \quad (3.36)$$

dans notre cas,  $n = 2, 4$  (harmonique 2 et harmonique 4) si aucune non-linéarité est introduite par le détecteur (voir par exemple [71]).

Le flux arrivant sur le détecteur est le premier élément du vecteur de Stokes donné par l'expression (3.34) :

$$I = I_0(a_0 + a_{2c} \cos 2P_t + a_{2s} \sin 2P_t + a_{4c} \cos 4P_t + a_{4s} \sin 4P_t), \quad (3.37)$$

où  $I_0 a_0$  est le flux moyen de la lumière incidente et  $P_t = \Omega t$  est l'azimut de l'axe de transmission du polariseur tournant au temps  $t$  par rapport au plan d'incidence. Les coefficients de Fourier  $a_0, a_{2c}, a_{2s}, a_{4c}$  et  $a_{4s}$  peuvent être considérés comme les éléments d'un vecteur  $\vec{a}$  donné par :

$$\vec{a} = \begin{bmatrix} a_0 \\ a_{2c} \\ a_{2s} \\ a_{4c} \\ a_{4s} \end{bmatrix} \quad (3.38)$$

Par identification avec l'expression (3.34) du vecteur de Stokes  $\vec{S}_f$  on obtient les coefficients de Fourier suivant :

$$a_0 = \frac{1}{2}(2 + \cos 2P \cos 2A - \cos 2P \cos 2\Psi - 2 \cos 2A \cos 2\Psi + \cos \Delta \sin 2P \sin 2A \sin 2\Psi) \quad (3.39)$$

$$a_{2c} = \cos 2P + \cos 2A - \cos 2\Psi - \cos 2P \cos 2A \cos 2\Psi \quad (3.40)$$

$$a_{2s} = \sin 2P - \cos 2A \cos 2\Psi \sin 2P + \cos \Delta \sin 2A \sin 2\Psi \quad (3.41)$$

$$a_{4c} = \frac{1}{2}(\cos 2P \cos 2A - \cos 2P \cos 2\Psi$$

$$- \cos \Delta \sin 2 P \sin 2 A \sin 2 \Psi) \quad (3.42)$$

$$a_{4s} = \frac{1}{2}(\cos 2 A \sin 2 P - \cos 2 \Psi \sin 2 P$$

$$+ \cos 2 P \cos \Delta \sin 2 A \sin 2 \Psi) . \quad (3.43)$$

Les coefficients de la série de Fourier tiennent compte du gain total  $G$  de la chaîne de mesure, comprenant non seulement la source (par le terme  $I_0$ ) mais aussi le détecteur et les circuits électroniques associés. La quantité réellement mesurée à la sortie du détecteur suivi de son électronique de comptage est de la forme :

$$I_{mes} = \alpha_0 + \alpha_{2c} \cos 2P_t + \alpha_{2s} \sin 2P_t + \alpha_{4c} \cos 4P_t + \alpha_{4s} \sin 2P_t, \quad (3.44)$$

avec  $\alpha_k = G \cdot a_k$  et  $k=0, 2c, 2s, 4c, 4s$ .

Dans la formule 3.44, on considère implicitement que l'origine des temps ( $t=0$ ) est l'instant où l'axe de transmission du polariseur tournant passe par le plan d'incidence. Pratiquement on mesure les composantes  $h_i$  par rapport à un instant origine différent ( $t'=0$ ), imposé par le montage mécanique de l'élément tournant, et qui correspond au début de l'opération de comptage. Le début du cycle de comptage est effectivement synchrone avec le "top zéro" du codeur angulaire du polariseur tournant. On aura ainsi :

$$I(t) = h_0 + h_{2c} \cos 2\Omega t' + h_{2s} \sin 2\Omega t' + h_{4c} \cos 4\Omega t' + h_{4s} \sin 4\Omega t' \quad (3.45)$$

A l'instant  $t'=0$ , l'axe de transmission occupe une position caractérisée par l'angle  $P_0$  de cet axe par rapport au plan d'incidence, déterminé lors du calibrage de l'appareillage. Si on pose

$$P = \Omega t \quad (3.46)$$

$$P' = \Omega t' \quad (3.47)$$

$$P_0 = \Omega t_0 \quad (3.48)$$

alors  $P' = P - P_0$  en grandeur et en signe et l'expression (3.45) devient

$$I(t) = h_0 + h_{2c} \cos 2(P - P_0) + h_{2s} \sin 2(P - P_0) + h_{4c} \cos 4(P - P_0) + h_{4s} \sin 4(P - P_0) \quad (3.49)$$

En développant cette expression et en identifiant avec l'expression (5.11), on obtient

$$\alpha_0 = h_0 \quad (3.50)$$

$$\alpha_{2c} = h_{2c} \cos 2P_0 - h_{2s} \sin 2P_0 \quad (3.51)$$

$$\alpha_{2s} = h_{2c} \sin 2P_0 + h_{2s} \cos 2P_0 \quad (3.52)$$

$$\alpha_{4c} = h_{4c} \cos 4P_0 - h_{4s} \sin 4P_0 \quad (3.53)$$

$$\alpha_{4s} = h_{4c} \sin 4P_0 + h_{4s} \cos 4P_0 \quad (3.54)$$

et en résolvant le système

$$h_0 = \alpha_0 \quad (3.55)$$

$$h_{2c} = \alpha_{2c} \cos 2P_0 + \alpha_{2s} \sin 2P_0 \quad (3.56)$$

$$h_{2s} = -\alpha_{2c} \sin 2P_0 + \alpha_{2s} \cos 2P_0 \quad (3.57)$$

$$h_{4c} = \alpha_{4c} \cos 4P_0 + \alpha_{4s} \sin 4P_0 \quad (3.58)$$

$$h_{4s} = -\alpha_{4c} \sin 4P_0 + \alpha_{4s} \cos 4P_0 \quad (3.59)$$

Les coefficients  $h_i$  sont calculés par la méthode de Hadamard (voir annexe A).

Le calcul du flux dans le cas général avec la matrice de Jones de réflexion  $R_s$  non diagonale est développé dans le chapitre 5 où nous traitons l'extension de PRPSE à l'ellipsométrie généralisée

### 3.11.3 Calcul des angles ellipsométriques

La mesure des paramètres  $\alpha_{2c}$ ,  $\alpha_{2s}$ ,  $\alpha_{4c}$  et  $\alpha_{4s}$  permet donc de remonter à  $\cos \Delta$  et  $\tan \Psi$  sans connaître la valeur absolue du flux, c'est là un avantage certain de l'ellipsométrie par rapport à d'autres techniques comme la réflectivité.

L'inversion analytique des équations (3.39) à (3.43) conduit aux grandeurs  $\cos \Delta$  et  $\tan \Psi$ .

On a :

$$\tan \Psi = \frac{\operatorname{sgn}(A) \tan A [B_1 + 2(1 - 2 \cos 2P) B_2]^{1/2}}{[B_1 - 2(1 + 2 \cos 2P) B_2]^{1/2}}, \quad (3.60)$$

$$\cos \Delta = \frac{\alpha_{4s} \cos 2P - \alpha_{4c} \sin 2P}{[B_1^2 - 4(1 - 2 \cos 2P)^2 B_2^2]^{1/2}}, \quad (3.61)$$

avec

$$\begin{aligned} B_1 &= 2\alpha_{4c} + \alpha_{2c} \cos 2P + \alpha_{2s} \sin 2P, \\ B_2 &= \alpha_{4c} \cos 2P + \alpha_{4s} \sin 2P. \end{aligned}$$

Le fait de mesurer  $\cos \Delta$  et non  $\Delta$  présente deux inconvénients :

- $\Delta$  n'est connu qu'à  $\pi$  près
- la mesure précise de  $\Delta$  pour certains échantillons pour lesquels  $\cos \Delta$  est très proche de  $\pm 1$  est délicate puisque l'expression de la différentielle

$$d\Delta = \frac{-d(\cos \Delta)}{\sin \Delta} \quad (3.62)$$

prédit une erreur importante.

## 3.12 Calibrage de l'ellipsomètre

La procédure du calibrage permet de positionner très précisément l'ensemble des éléments optiques par rapport à un plan de référence. Lorsque le montage inclut un échantillon c'est le plan d'incidence qui est choisi comme référence.

En fin de calibrage, les axes de transmission de l'analyseur, du polariseur tournant et du polariseur fixe doivent être dans le plan d'incidence, et l'angle  $P_0$  qui caractérise la position de l'axe privilégié du polariseur tournant en début de comptage (c'est le "top zéro"), par rapport au plan d'incidence doit être déterminé.

Cette opération est à effectuer avant toute mesure ou série de mesures. Elle est primordiale car elle influe directement sur la précision d'une mesure. Effectivement les erreurs d'azimut se répercutent sur les coefficients de Fourier ainsi que sur les angles ellipsométriques  $\Psi$  et  $\Delta$  sous forme d'erreurs systématiques.

Une procédure spécifique à l'ellipsomètre à polariseur tournant à trois éléments a été mise au point au laboratoire, plus complexe que celle utilisée dans le cas du montage à polariseur tournant à deux éléments [68].

Nous utilisons la méthode de calibrage par le module, qui consiste à définir une fonction (en utilisant les modules des harmoniques deux et quatre), appelée "résiduelle", qui présente un extremum lorsque l'azimut de l'élément optique étudié, se trouve exactement dans le plan d'incidence.

### 3.13 Erreurs systématiques

On distingue deux types d'erreurs systématiques : les erreurs d'ellipticité  $\gamma$  et les erreurs d'azimut.

Les erreurs d'ellipticité proviennent des imperfections des éléments optiques. En effet, le faisceau lumineux est faiblement polarisé elliptiquement en traversant un élément optiquement actif. De ce fait, il faut tenir compte dans la matrice perturbation.

Les erreurs d'azimut sont essentiellement provoquées par un mauvais étalonnage. Les éléments optiques imparfaits perturbent la localisation du plan d'incidence. Pour une localisation incorrecte de ce plan, on aura une détermination incorrecte de l'azimut des éléments optiques.

L'effet de chacune des causes d'erreur est étudié individuellement. L'erreur globale commise sur les angles ellipsométriques est obtenue en additionnant algébriquement les effets des différentes causes d'erreur.

Les différentes erreurs systématiques peuvent être explicitées analytiquement en calculant pour chacune des causes d'erreur considérée les matrices perturbation de chaque élément optique. Les expressions analytiques des erreurs systématiques sont détaillées dans les références ([68, 72]). Dans le tableau 3.1, nous donnons les erreurs systématiques sur  $\tan \Psi$  et  $\cos \Delta$  dans le cas particulier :  $A = \pm 45^\circ$  et  $P = 0^\circ$ .

#### 3.13.1 La mesure double-zone

Une mesure double-zone est un moyen de corriger au premier ordre les erreurs systématiques. Elle consiste à déterminer la grandeur recherchée en prenant la moyenne arithmétique de deux mesures effectuées dans des conditions particulières. Elle sera utilisée systématiquement lors de l'acquisition de spectres ellipsométriques pour des échantillons isotropes et anisotropes avec la matrice de Jones diagonale. Dans ces cas, les mesures sont effectuées à deux positions symétriques de l'analyseur, par rapport au plan d'incidence :  $A = \pm 45^\circ$ , avec le polariseur positionné à  $P = 0^\circ$ .

D'après le tableau 3.1, les moyennes s'annulent puisque les erreurs systématiques liées aux imperfections des polariseurs et aux erreurs de positionnement des polariseurs sont antisymétriques par rapport à l'angle  $A$  de l'analyseur.



|                | $\delta \tan \Psi$   | $\delta \cos \Delta$   |
|----------------|--|--|
| $\delta A$     | $-2\text{sgn } A \tan \Psi$                                      | 0  |
| $\delta P$     | $2\text{sgn } A \cos \Delta (\cos 2\Psi - 1) / (1 + \cos 2\Psi)$ | $2\text{sgn } A \csc 2\Psi (-\cos^2 \Delta - \cos 2\Psi \sin^2 \Delta)$  |
| $\delta P_t$   | $2\text{sgn } A \cos \Delta (2 - \cos 2\Psi) / (1 + \cos 2\Psi)$ | $2\text{sgn } A \csc 2\Psi (\cos^2 \Delta + 2 \cos 2\Psi \sin^2 \Delta)$ |
| $\gamma_A$     | 0  | $-2\text{sgn } A \sin \Delta$  |
| $\gamma_P$     | 0  | 0  |
| $\gamma_{P_t}$ | $2\text{sgn } A \sin \Delta \cos 2\Psi / (1 + \cos 2\Psi)$       | $-\text{sgn } A \sin 2\Delta \csc 2\Psi$                                 |

**Tableau 3.1:** Erreurs systématiques sur  $\tan \Psi$  et  $\cos \Delta$  dans le cas d'un ellipsomètre à polariseur tournant à trois éléments. Cas particulier :  $A = \pm 45^\circ$  et  $P = 0^\circ$

### 3.14 Conclusion du troisième chapitre

Après avoir rappelé quelques notions sur la polarisation de la lumière et les représentations matricielles de l'état de polarisation, nous avons présenté les différents types d'ellipsomètres, les avantages et les inconvénients de chaque montage.

Nous avons ensuite donné le principe de l'ellipsométrie conventionnelle et la définition de l'ellipsométrie généralisée. Quelques exemples de calcul des angles ellipsométriques pour un substrat anisotrope uniaxe ont été présentés et montrent l'importance du choix de l'angle d'incidence et l'angle azimutal permettant d'obtenir des spectres ellipsométriques avec le maximum de sensibilité.

Nous avons aussi décrit les différentes méthodes d'exploitation des spectres ellipsomé-

triques (inversion point par point, régression) permettant de remonter aux caractéristiques du système étudié. Ces algorithmes nécessitent des valeurs initiales pour le démarrage du calcul et pour initialiser les paramètres variables. La bonne convergence des algorithmes de minimisation dépendent des valeurs initiales.

Enfin, nous avons présenté en détail le principe de fonctionnement de l'ellipsomètre à polariseur tournant à trois éléments, PRPSE. La méthode de mesure conventionnelle des angles ellipsométriques a été décrite. Nous avons également mentionné l'intérêt de la mesure double-zone. cette méthode permet d'annuler au premier ordre les erreurs systématiques pour la configuration standard du PRPSE (matrice de de réflexion de Jones diagonale).

## Chapitre 4

# Étude des propriétés optiques de la variété rouge de $\text{HgI}_2$

### 4.1 Introduction

Au cours des dernières années, la détection des rayonnements nucléaires par des dispositifs semi-conducteurs a connu un essor considérable.

De nombreux travaux ont été entrepris pour mettre au point des compteurs de grande efficacité et de bonne résolution en énergie à température ambiante. Parmi les matériaux utilisables, l'iodure mercurique possède une efficacité de détection par effet photoélectrique importante [73].

L'iodure mercurique est un matériau anisotrope connu surtout dans l'industrie. En raison d'un grand numéro atomique de ces atomes constitutifs ( $Z=80$  pour Hg et  $Z=53$  pour I),  $\text{HgI}_2$  a une puissance d'arrêt élevée pour les photons. Sa large bande interdite permet des opérations à température ambiante sans générer de bruits thermiques excessifs.

Ceci fait de  $\text{HgI}_2$  un excellent détecteur des rayons X et  $\gamma$  [74]. L'emploi à température ambiante rend les détecteurs fabriqués à partir de  $\text{HgI}_2$  intéressants dans de nombreuses applications (réacteurs nucléaires, chimie analytique, la médecine, instrumentation spatiale ...) [75, 74].

Il existe trois variétés cristallographiques de  $\text{HgI}_2$  :  $\alpha$  rouge,  $\beta$  jaune et  $\gamma$  orange. Nous n'examinerons que la variété  $\alpha$  rouge. Notons enfin que la variété  $\alpha$  est stable en dessous de  $127^\circ\text{C}$ , température de transition vers la variété jaune  $\beta$  orthorhombique de  $\text{HgI}_2$ . Cette

variété  $\alpha$  présente également l'avantage de donner des cristaux dichroïques faciles à orienter [19].

Tous les échantillons que nous avons utilisé ont été préparés au laboratoire PHASE (Laboratoire de Physique et Applications des Semi-conducteurs), au centre de recherches nucléaires de Strasbourg.

## 4.2 Préparation des monocristaux

Dans ce paragraphe, nous donnons un aperçu sur la méthode de préparation des monocristaux  $\alpha$ -HgI<sub>2</sub>.

En général trois étapes sont nécessaires : synthèse du matériau, purification et croissance.

Quoique le mercure et l'iode se combinent facilement par simple mélange, on prépare habituellement l'iodure mercurique par double décomposition entre des solutions de chlorure mercurique (HgCl<sub>2</sub>) et d'iodure de potassium (KI). À l'issue de cette première étape, une poudre de HgI<sub>2</sub> est obtenue. Elle est ensuite purifiée. La méthode de purification la plus courante est la sublimation répétée (au minimum trois fois) [78].

Pour la troisième étape, trois méthodes sont envisageables : la croissance en solution [79, 19], sur un gel [80] ou en phase vapeur [81].

Parmi les méthodes de croissance en phase vapeur, celle de l'oscillation de la température [82] permet la croissance couche par couche de gros monocristaux (20 cm<sup>3</sup>) de 100 à 500 grammes en quelques mois.

## 4.3 Structure cristalline de la variété $\alpha$ -HgI<sub>2</sub>

L'iodure mercurique rouge HgI<sub>2</sub> est un semi-conducteur de structure lamellaire, son groupe spacial est  $D_{4h}^{15}$  [77]. La variété  $\alpha$ -HgI<sub>2</sub>, cristallise dans la structure tétragonale. La maille est constituée à partir de deux atomes de Hg et de quatre atomes de I (voir figure 4.1). Elle est caractérisée par les paramètres  $a = 4,361 \text{ \AA}$  et  $c = 12,450 \text{ \AA}$  [83].

Le cristal est formé de couches parallèles et alternées d'atomes de mercure et d'atomes d'iode. Pour les liaisons, deux types au moins sont possibles : les liaisons fortes à caractère covalent entre les atomes de mercure et de d'iode et les liaisons de Van der Waals entre les atomes d'iode des différentes couches [84]. Ces liaisons sont faibles expliquant ainsi la facilité

du clivage suivant les plans (001). La distance Hg-Hg entre les plans est 6,95 Å, la

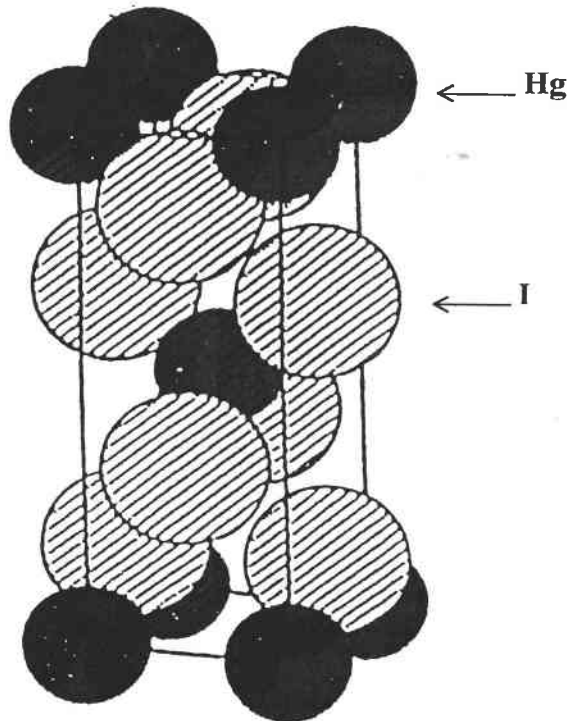


Figure 4.1: La maille primitive de  $\text{HgI}_2$  [88].

distance interatomique est de l'ordre de 2,78 Å et la distance minimale entre deux iodes est de 4,14 Å [86]. Une telle distance intercouche facilite la pollution du matériau par les impuretés qui diminuent l'aptitude au clivage et provoquent des dislocations dans la structure tétragonale [85].

#### 4.4 Structure de bande de $\text{HgI}_2$

La connaissance imparfaite de la structure de bande de  $\text{HgI}_2$ , a rendu les mesures expérimentales des propriétés optiques de  $\text{HgI}_2$  difficiles à interpréter.

La première structure de bande de  $\text{HgI}_2$  a été donnée par Yee *et coll* [87]. Malheureusement, la structure du cristal utilisée dans leur calcul est incorrecte. De plus ce calcul ne tient pas compte de l'interaction spin orbite (calcul non relativiste).

Récemment, les propriétés électriques et optiques de  $\text{HgI}_2$  ont fait l'objet de plusieurs études théoriques [88, 89, 90, 91]. En utilisant l'approximation de la densité locale, Turner et

#### 4. Étude des propriétés optiques de la variété rouge de $HgI_2$

Harmon [88], présentent le résultat d'un calcul relativiste. La structure de bande obtenue est correcte, cependant, le gap optique est faible (0,52 eV), cela est dû à cette approximation.

En 1992, Chang *et coll* [89] ont donné la structure de bande de  $HgI_2$ , en utilisant le modèle du pseudopotentiel empirique non local et en tenant compte de l'interaction spin orbite (voir figure 4.2). Nous présentons dans ce paragraphe le détail de la structure de bande de  $HgI_2$  calculée à partir du modèle de Chang et James.

La structure de bande de  $HgI_2$ , est composée de niveaux d'énergies doublement dégénérés

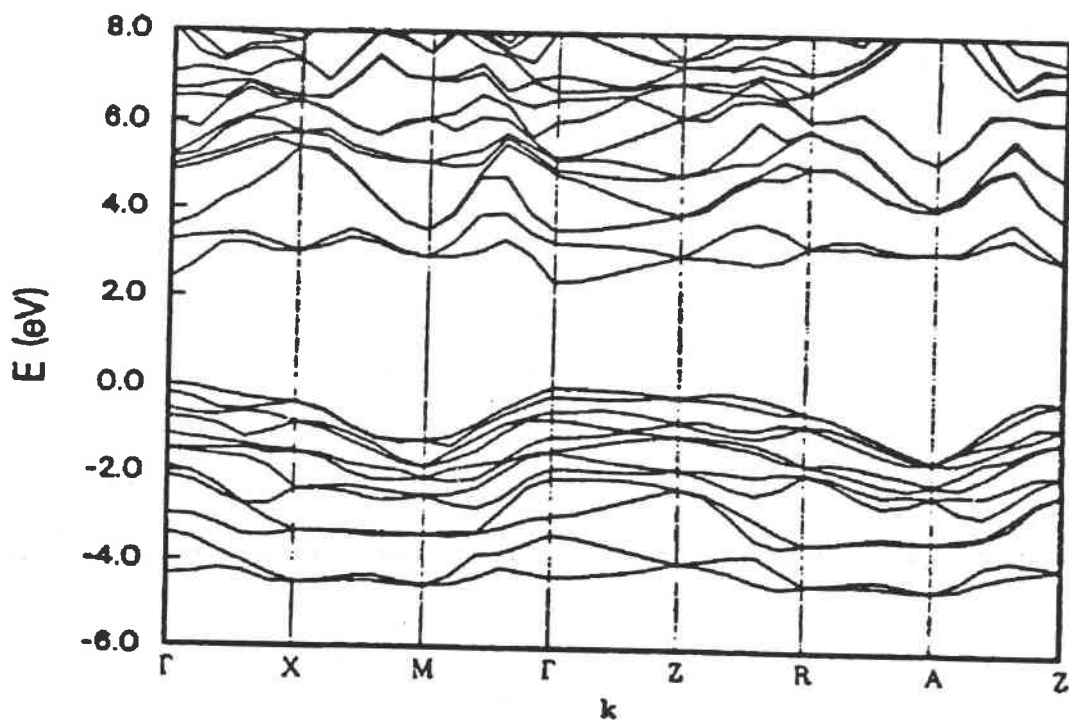


Figure 4.2: La structure de bande de  $HgI_2$  avec interaction spin orbite.

et non dégénérés. Sur la figure (4.2), on distingue quatre niveaux doublement dégénérés avec des énergies comprises entre -2 et 0 eV correspondant aux états non liés de l'iode  $I 5p_x$  et  $I 5p_y$ .

Les deux niveaux non dégénérés proches de -1,5 et -2,5 eV correspondent aux états non liés  $I 5p_z$ .

Les deux orbitales restantes,  $I 5p_z$  réagissent avec les deux orbitales Hg 6s pour former deux états liés aux énergies comprises entre -4,5 et -3 eV et deux états anti-liés aux énergies comprises entre 2,3 et 3,5 eV. Les niveaux  $I 5s$  sont proches de -11 eV (non illustrés sur la

figure). Les niveaux Hg 6p et I 5d se répartissent de 3,5 à 10 eV, parmi lesquels les niveaux doublement dégénérés peuvent être identifiés comme les états Hg  $p_x$  et Hg  $p_y$ .

Les niveaux Hg 5d qui se trouvent entre les états liés I 5s et Hg 6s-I 5p<sub>z</sub> sont considérés comme des niveaux essentiels dans le modèle de Chang et James. Dans ce modèle le gap optique est égal à 2,37 eV.

Les figures (4.3) et (4.4) représentent respectivement la zone de Brillouin de  $HgI_2$  et sa structure de bande au voisinage du centre de la zone.

A gauche, le vecteur d'onde  $\vec{K}$  est parallèle à la direction [110] et à droite, il est parallèle à la direction [001].

On trouve que la bande de conduction possédant des énergies positives est presque isotrope tandis que la bande de valence possédant des énergies négatives est plutôt anisotrope [89].

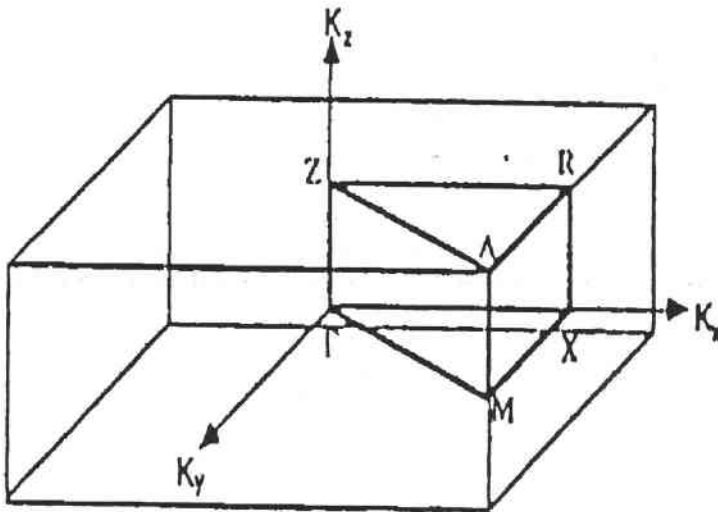


Figure 4.3: La zone de Brillouin de  $HgI_2$ .

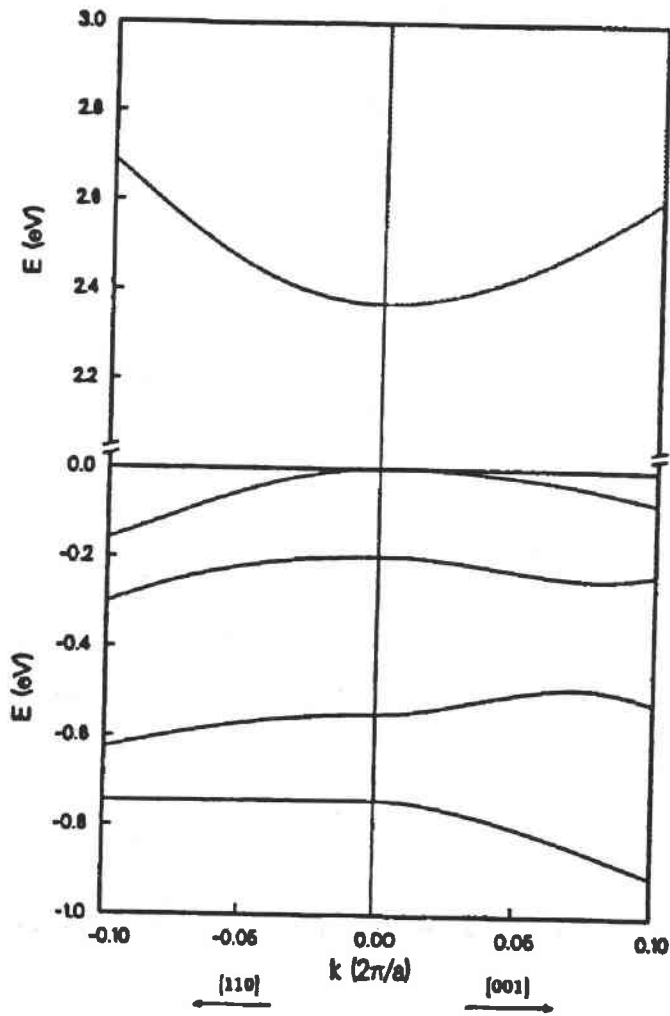


Figure 4.4: La structure de bande de  $\text{HgI}_2$  près du centre de la zone [89].

## 4.5 Propriétés semiconductrices de $\alpha\text{-HgI}_2$

Les performances des détecteurs fabriqués à base de l'iodure mercurique sont liées à ses propriétés semiconductrices.

En général, les dispositifs de détection dépendent d'un certain nombre de paramètres tels que : le numéro atomique, la densité du matériau, la largeur de la bande interdite, la mobilité et de la durée de vie des porteurs. Ces paramètres sont essentiels pour comprendre le temps de réponse et la qualité d'un détecteur.

Un matériau est d'autant plus performant en tant que détecteur que la largeur de la



bande interdite ( $E_I$ ), la mobilité ( $\mu$ ) et de la durée de vie des porteurs ( $\tau$ ) sont élevées.

### Mobilité

La mobilité des électrons et des trous décroît lorsque la température augmente. La mobilité dépend aussi de l'orientation cristallographique. La mobilité des électrons dans la direction parallèle à l'axe optique est toujours supérieure à celle des électrons dans la direction perpendiculaire. A température ambiante, la mobilité des électrons dans la direction parallèle à l'axe optique est égale à :  $100 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{sec}^{-1}$  [92, 93], et dans la direction perpendiculaire elle est égale à :  $65 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{sec}^{-1}$  [94].

### Largeur de la bande interdite

Plusieurs méthodes, sous différentes conditions, ont été utilisées pour mesurer la largeur de la bande interdite.

Sur le tableau 4.1, nous avons présenté les valeurs de  $E_I$  figurant dans la littérature.

| Référence        | [95] | [96] | [97]  | [20]  |
|------------------|------|------|-------|-------|
| $E_I(\text{eV})$ | 2,11 | 2,37 | 2,369 | 2,397 |

Tableau 4.1: Largeur de la bande interdite de  $\text{HgI}_2$

La différence existant entre les différentes valeurs de  $E_I$  peut être attribuée en partie aux différentes techniques de mesure utilisées et également à la variation de la pureté et de la qualité des cristaux.

## 4.6 Propriétés physico-chimiques de $\text{HgI}_2$

La plupart des propriétés chimiques de  $\text{HgI}_2$  sont comparables à celles du chlorure mercurique  $\text{HgCl}_2$  et du bromure mercurique  $\text{HgBr}_2$  [86].

L'iodure mercurique est très peu soluble dans l'eau. Sa solubilité est inférieure à 0,01 g/100ml. Le cristal  $\text{HgI}_2$  est beaucoup plus soluble dans de nombreux solvants organiques, tels que : méthanol (2,5 g/100g de  $\text{CH}_3\text{OH}$ ), éthanol (1,754 g/100g de  $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$ ), etc. La

solubilité reste, assez faible dans l'ensemble [86]. Cependant, il se dissout facilement dans des solutions aqueuses d'acide iodhydrique ou d'iodures métalliques telles que l'iodure de potassium (KI) utilisé pour le traitement de surface de  $\text{HgI}_2$  (voir paragraphe 4.8).

La faible solubilité dans les corps gras d'origine animale ou végétale permet son emploi dans certaines pommades vétérinaires [86].

L'iodure mercurique est un composé relativement peu stable à l'air, même à température ambiante. La surface des cristaux de  $\text{HgI}_2$  subit des altérations chimiques de la part des composés soufrés [86].

Au cours du temps, il peut en résulter des modifications des propriétés physiques telles que les propriétés optiques, électriques, photoélectriques, etc.

Il faut noter que les surfaces des cristaux obtenues par sciage ne sont ni parfaitement planes ni chimiquement parfaites d'où la nécessité de les améliorer en procédant à des polissages chimiques ou (et) mécaniques (voir les paragraphes suivantes).

L'un des procédés utilisés à cet effet, consiste à traiter la surface avec une solution diluée d'iodure de potassium (KI). La plupart des travaux ont été effectués sur des solutions contenant  $\text{HgI}_2$  et KI, mais il n'y a pas de doute que les phénomènes sont comparables dans les solutions d'autres iodures métalliques.

Il a été reconnu que le traitement de la surface de  $\text{HgI}_2$  par le KI, a pour conséquence, la formation d'anions iodomercurates  $[\text{HgI}_{2+n}]^{n-}$  ( $n \leq 2$ ) par fixation d'ions  $\text{I}^-$  sur la molécule  $\text{HgI}_2$ . Il en résulte que les seuls complexes possibles sont  $[\text{HgI}_4, 3\text{H}_2\text{O}]^{2-}$  et  $[\text{HgI}_3, \text{H}_2\text{O}]^-$  [86].

La nature du complexe dépend du rapport  $R$  de la concentration moléculaire à celle de l'iodure de potassium [98].

Si  $R \leq \frac{1}{2}$  l'ion  $[\text{HgI}_4]^{2-}$  prédomine.

Si  $R \geq 1$  l'ion  $[\text{HgI}_3]^-$  prédomine.

Si  $\frac{1}{2} < R < 1$  on obtient un mélange de ces deux ions.

A l'état cristallisé, l'étude faite par Pernot [99] montre que dans l'intervalle de température 0 à 80° une seule combinaison cristallise, à savoir l'aquotriiodomercurate de potassium  $\text{KHgI}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$ .

## 4.7 Caractérisation de $HgI_2$ par ellipsométrie spectroscopique conventionnelle

### 4.7.1 Introduction

Pour analyser la surface d'un milieu anisotrope uniaxe, il faut d'abord localiser l'axe optique par rapport à la surface du cristal. En général, l'orientation d'un matériau anisotrope est primordiale pour les mesures ellipsométriques. La détermination de l'axe optique se réalise par plusieurs méthodes telles que la technique de diffraction des rayons X ou au microscope polarisant.

Les mesures ellipsométriques sur des matériaux anisotropes nécessitent des réglages fins de manière à éviter des erreurs de mise au point. De ce fait, notre travail a nécessité des tests concernant la fiabilité et la reproductibilité des mesures.

Au préalable, nous avons essayé d'apporter des éléments de réponse aux questions suivantes :

- est-il possible de déterminer les deux indices de réfraction complexes ordinaire et extraordinaire d'un substrat uniaxe par ellipsométrie conventionnelle?
- quelles sont les orientations de l'axe optique souhaitables pour extraire les valeurs correctes des constantes optiques?

Selon la nature diagonale ou non diagonale de la matrice de Jones de l'échantillon, il y a lieu de distinguer l'ellipsométrie conventionnelle avec laquelle nous allons étudier les caractéristiques optiques de  $HgI_2$  dans la suite de ce chapitre, de l'ellipsométrie généralisée qui fera l'objet du dernier chapitre. Nous avons étudié les caractéristiques optiques de  $HgI_2$  par les deux techniques.

D'un point de vue pratique, le substrat  $HgI_2$  (dans le cas où l'axe optique est parallèle à la surface) nous a posé de gros problèmes de positionnement sur le "porte-échantillon". L'adaptation au montage optique du porte-échantillon a été réalisée de manière à définir la position de l'axe optique par rapport au plan d'incidence.

Du fait de la faible réflexion de la lumière sur la surface de ce cristal ( $HgI_2$ ), le calibrage de l'ellipsomètre à polariseur tournant est très délicat.

Dans cette étude, nous montrons qu'il est possible de mesurer par ellipsométrie conventionnelle les indices complexes ordinaire et extraordinaire d'un milieu anisotrope uniaxe. Cependant, comme nous allons le voir, les mesures effectuées par variation de l'angle d'incidence sur des cristaux dont l'axe optique est perpendiculaire à la surface ne permettent pas de résoudre le problème de l'anisotropie dans ces milieux. Dans ce cas, l'inversion des équations ellipsométriques conduit à un système mal conditionné (*ill conditioned*).

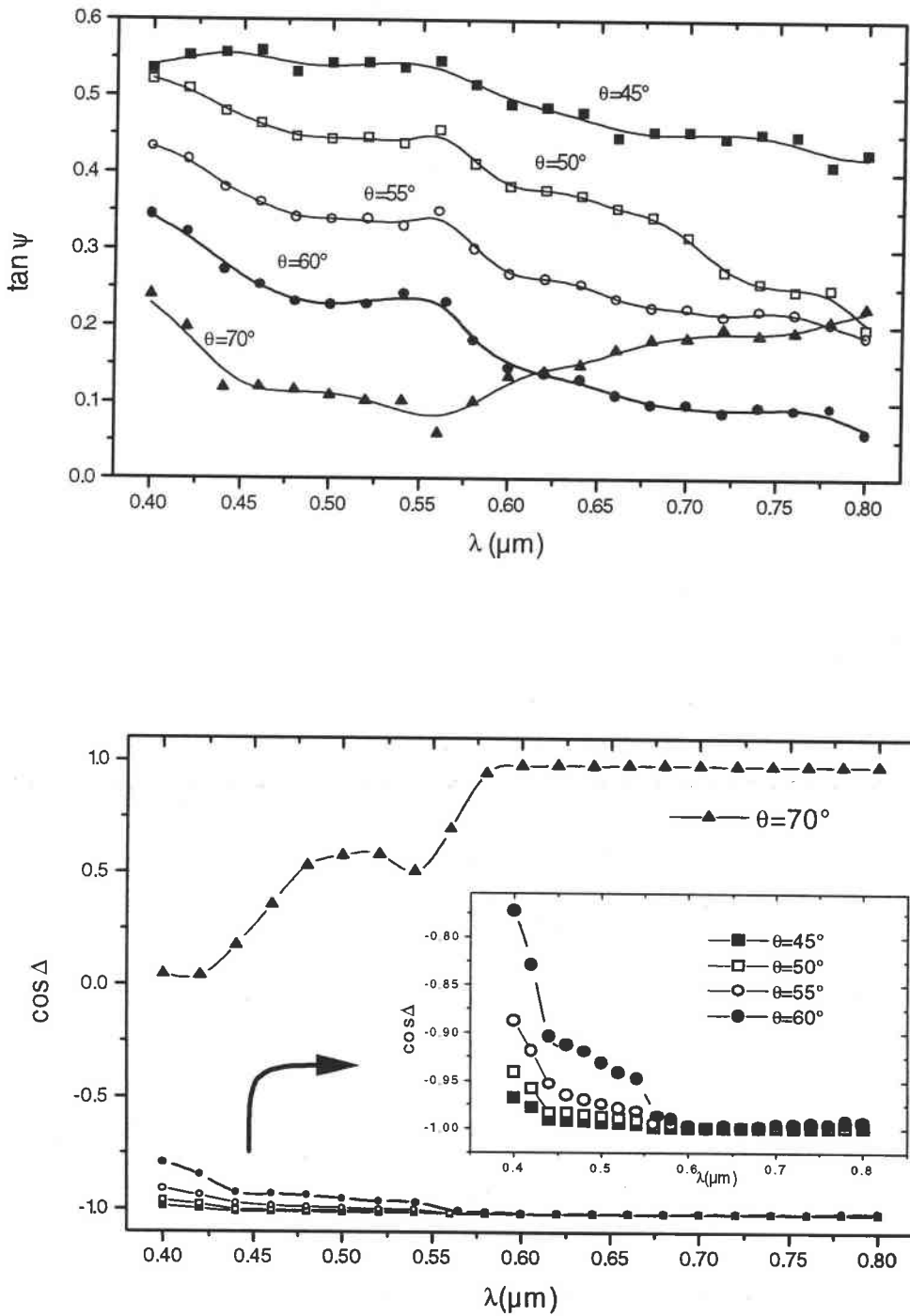
#### 4.7.2 Axe optique de $\text{HgI}_2$ perpendiculaire à la surface

Nous avons vu que la matrice de réflexion de Jones est diagonale pour un substrat uniaxe avec l'axe optique normal à la surface. Nous pouvons alors appliquer l'ellipsométrie conventionnelle et ainsi mesurer les paramètres ellipsométriques  $\tan \Psi$  et  $\cos \Delta$ . Ici, les coefficients de réflexion ne dépendent que de l'angle d'incidence (voir équations 2.63 and 2.64). Nous avons essayé d'inverser les équations ellipsométriques en réalisant des mesures spectroscopiques à plusieurs angles d'incidence.

Les surfaces perpendiculaires à l'axe optique sont faciles à polir, la solution envisagée pour limiter les effets de la formation d'une couche consiste à cliver les échantillons juste avant de les placer sur le porte-échantillon de l'ellipsomètre. Par contre, Les surfaces contenant l'axe optique nécessitent d'élaborer une procédure de polissage adéquate (voir paragraphe 4.7.3).

Sur la figure 4.5 sont présentés les réponses ellipsométriques de  $\text{HgI}_2$  en fonction de la longueur d'onde et de l'angle d'incidence. Ces courbes mettent bien en évidence l'existence d'un bord d'absorption au voisinage de  $0,56 \mu\text{m}$ .

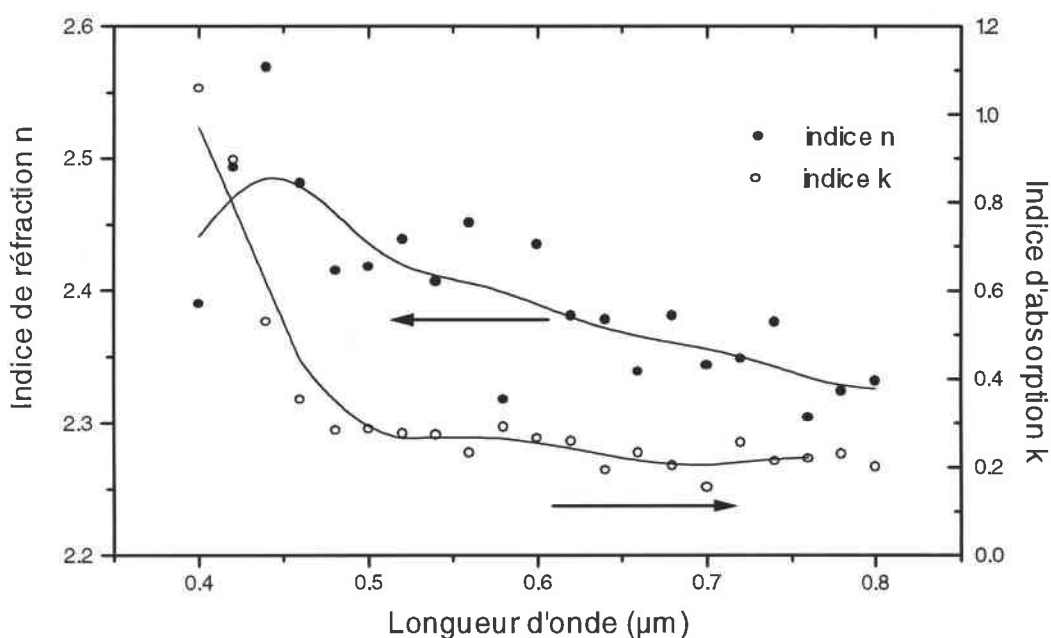
Malheureusement, l'exploitation numérique de ces spectres ne permet pas de déterminer les constantes optiques de  $\text{HgI}_2$ . Nous ne pouvons pas distinguer les indices ordinaire et extraordinaire en utilisant les données mesurées pour des échantillons uniaxes avec l'axe optique perpendiculaire à la surface.



**Figure 4.5:** Spectres expérimentaux de l'échantillon  $HgI_2$  avec l'axe optique perpendiculaire à la surface en fonction de la longueur d'onde et de l'angle d'incidence

#### 4. Étude des propriétés optiques de la variété rouge de $\text{HgI}_2$

Sur la figure (4.6), nous présentons les indices de réfraction et d'absorption obtenus par une procédure d'inversion point par point (longueur d'onde par longueur d'onde) à partir des grandeurs  $\tan \Psi$  et  $\cos \Delta$  mesurées en double-zone. Un milieu uniaxe absorbant est caractérisé par quatre indices  $n_o$ ,  $n_e$ ,  $k_o$  et  $k_e$ . Or la figure (4.6) ne présente que deux courbes. Ces résultats ne sont pas appropriés à  $\text{HgI}_2$ . Pour certaines longueurs d'ondes, l'algorithme de régression a même convergé vers des valeurs tout à fait erronées (des indices d'absorption ayant des valeurs négatives). En plus l'indice  $K$  est supérieur à 0 dans le domaine spectral où  $\text{HgI}_2$  est transparent.



**Figure 4.6:** Indices obtenus pour  $\text{HgI}_2$  avec l'axe optique perpendiculaire à la surface. Les courbes en traits pleins sont le résultat de la procédure d'ajustement. Ces indices ne représentent pas l'anisotropie optique de  $\text{HgI}_2$ . À noter qu'il ne s'agit pas non plus de la moyenne entre les indices ordinaire et extraordinaire.

La solution approximative à ce problème a été étudié par Aspnes [104] et confirmé par De Smet [62], montre qu'au premier ordre, l'indice de réfraction apparent d'un cristal uniaxe avec son axe optique perpendiculaire à la surface ne dépend pas de l'angle d'incidence  $\theta$ . L'acquisition des paramètres ellipsométriques en fonction de  $\theta$ , ne permet pas de remonter aux propriétés optiques d'un tel matériau.

La même difficulté a été rencontrée par Schubert [40] pour le substrat uniaxe [001]  $\text{TiO}_2$  (axe optique perpendiculaire à la surface) malgré l'utilisation de l'ellipsométrie généralisée.

Pour conclure, il est indispensable de disposer d'échantillons dont l'axe optique n'est pas normal à la surface pour déterminer les indices complexes ordinaire et extraordinaire d'un milieu anisotrope uniaxe par ellipsométrie.

### 4.7.3 Axe optique de $\text{HgI}_2$ parallèle à la surface

#### Préparation des échantillons

L'une des principales difficultés expérimentales, lors de la mesure par ellipsométrie des indices de  $\text{HgI}_2$  parallèle à l'axe, provient de la préparation des surfaces des échantillons. En effet, l'ellipsométrie est une technique très sensible à la présence d'une couche de transition (oxyde, rugosité, pollution) à la surface d'un échantillon. Une surface non plane peut perturber considérablement les mesures d'indices effectuées sur un substrat. Il faut donc s'en affranchir au maximum.

Chaque échantillon de  $\text{HgI}_2$  subit un prépolissage mécanique avec le papier Mecaprex de granulométrie P4000 destiné à aplanir la surface. La finition du polissage est réalisée sur un tissu de type Lam Plan Cameo Blanc (tissu "satin 1/4" fibre d'acétate). Nous avons remarqué que cette procédure donne de bons résultats; des surfaces lisses et planes ont été obtenues. La reproductibilité du procédé de préparation a été testée en répétant plusieurs fois les mesures. Aucune variation n'a été observée sur les paramètres ellipsométriques.

Auparavant, d'autres traitements de surface avaient été testés. Par exemple, nous avons fait subir à chaque échantillon un prépolissage mécanique avec du papier Mecaprex P2400, suivi d'un polissage complémentaire sur un tissu avec du méthanol. Des essais ont été effectués en rinçant les échantillons avec  $\text{H}_2\text{O}$  et d'autres sans rinçage. Mais cette procédure endommage la surface et les mesures des paramètres  $\tan \Psi$  et  $\cos \Delta$  ne sont plus représentatives de  $\text{HgI}_2$ .

Généralement, l'un des procédés les plus utilisés pour polir ou nettoyer les échantillons  $\text{HgI}_2$  est d'employer une solution diluée d'iodure de potassium (KI). Sieskind *et col.* [17] ont prouvé que, le traitement au KI laisse une surface couverte d'une couche contenant de grandes quantités d'eau; le composé identifié correspond au complexe  $[\text{KHgI}_3, \text{H}_2\text{O}]$  [100].

#### 4. Étude des propriétés optiques de la variété rouge de $\text{HgI}_2$

Pour étudier les propriétés optiques du substrat  $\text{HgI}_2$ , nous avons réalisé des mesures ellipsométriques pour la première fois sans aucun traitement chimique avec le KI. Auparavant, les échantillons subissent la procédure de polissage décrite au début de ce paragraphe.

##### Conditions expérimentales

Ces premières mesures ont été réalisées après l'installation sur l'ellipsomètre PRPSE d'un porte échantillon rotatif. En fait, la solution que nous avons adoptée pour déterminer les constantes optiques dans un substrat anisotrope est de faire tourner le cristal autour de l'axe perpendiculaire à la surface. Cette méthode permet d'effectuer plusieurs mesures pour différentes positions de l'échantillon. Cependant, la rotation du cristal induit une variation non négligeable des éléments non diagonaux  $R_{ps}$  and  $R_{sp}$  de la matrice de Jones de réflexion. Rappelons que l'utilisation de l'ellipsométrie conventionnelle nécessite des éléments non diagonaux nuls.

Néanmoins, nous pouvons toujours travailler dans les conditions de l'ellipsométrie conventionnelle si le cristal est orienté parallèlement au plan d'incidence  $\varphi = 0^\circ$  ou perpendiculairement à ce plan  $\varphi = 90^\circ$ . Dans ces deux cas, les coefficients  $R_{ps}$  et  $R_{sp}$  s'annulent (voir équations 2.100-2.101 et 2.105-2.106). Il suffit alors de repérer expérimentalement ces deux configurations.

##### Alignement de l'échantillon

À présent, nous allons montrer l'importance de l'alignement de l'échantillon. L'axe optique est normal à la surface de clivage de  $\text{HgI}_2$ . Les cristaux ont été coupés perpendiculairement à cette surface (cela permet d'obtenir des surfaces parallèles à l'axe optique). Ensuite, l'échantillon à étudier est monté sur le porte échantillon de l'ellipsomètre. Nous avons équipé l'ellipsomètre d'un porte échantillon rotatif doté de deux vis de réglage fin permettant de positionner soigneusement l'échantillon afin que sa normale coïncide avec l'axe de rotation. Le cas idéal à réaliser durant les mesures est représenté sur la figure (4.7).

Un mauvais positionnement du cristal peut impliquer une précession de la normale à l'échantillon autour l'axe de rotation et avec elle une oscillation du plan d'incidence [35, 105]. Cette oscillation induit des erreurs systématiques sur les mesures des coefficients de Fourier et par conséquent sur les angles ellipsométriques.

Pour éviter cette oscillation du plan d'incidence, nous ajustons l'échantillon en rotation



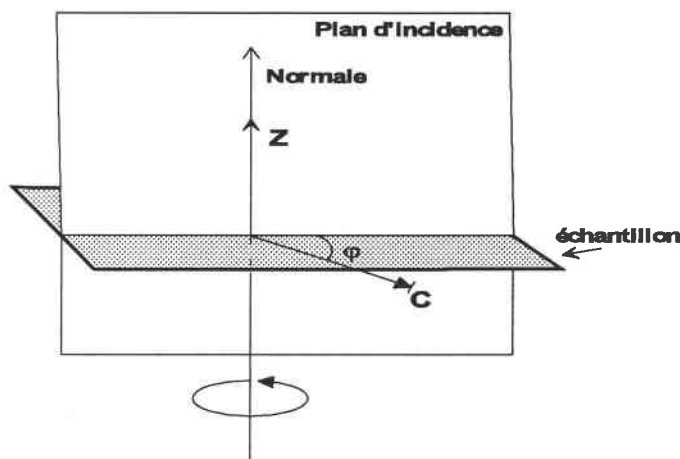


Figure 4.7: Normale à l'échantillon confondue avec l'axe de rotation.

continue de manière à immobiliser l'image du faisceau réfléchi par l'échantillon. La méthode consiste à régler la position de l'échantillon afin que le faisceau réfléchi se confonde avec l'axe de la lunette autocollimatrice. Ensuite nous déclenchons la rotation du matériau et observons à travers l'oculaire de la lunette, l'évolution du spot réfléchi au cours de la rotation. Si le réglage était parfait, la position du spot resterait fixe dans la lunette autocollimatrice. En pratique on remarque une déviation de la normale à l'échantillon autour de l'axe de rotation, c'est-à-dire, formation d'une image source tournant autour de l'axe de rotation. Mais, pour s'en affranchir, il suffit de jouer sur l'inclinaison de l'échantillon et d'affiner le réglage en jouant sur les vis de réglage fin.

Pour mettre en évidence la précision de ce réglage et tester la méthode, nous avons mesuré les coefficients de Fourier pour un substrat de silicium. La mesure s'est effectuée à l'angle d'incidence  $70^\circ$  pour une longueur d'onde de 632,8 nm. Le silicium étant isotrope, on ne devrait noter aucune variation au cours de la mesure. Sur la figure 4.8, nous avons représenté les coefficients de Fourier  $\alpha_{2c}$ ,  $\alpha_{2s}$ ,  $\alpha_{4c}$  et  $\alpha_{4s}$  mesurés en fonction de l'angle de rotation de l'échantillon  $\varphi$ .

4. Étude des propriétés optiques de la variété rouge de  $HgI_2$

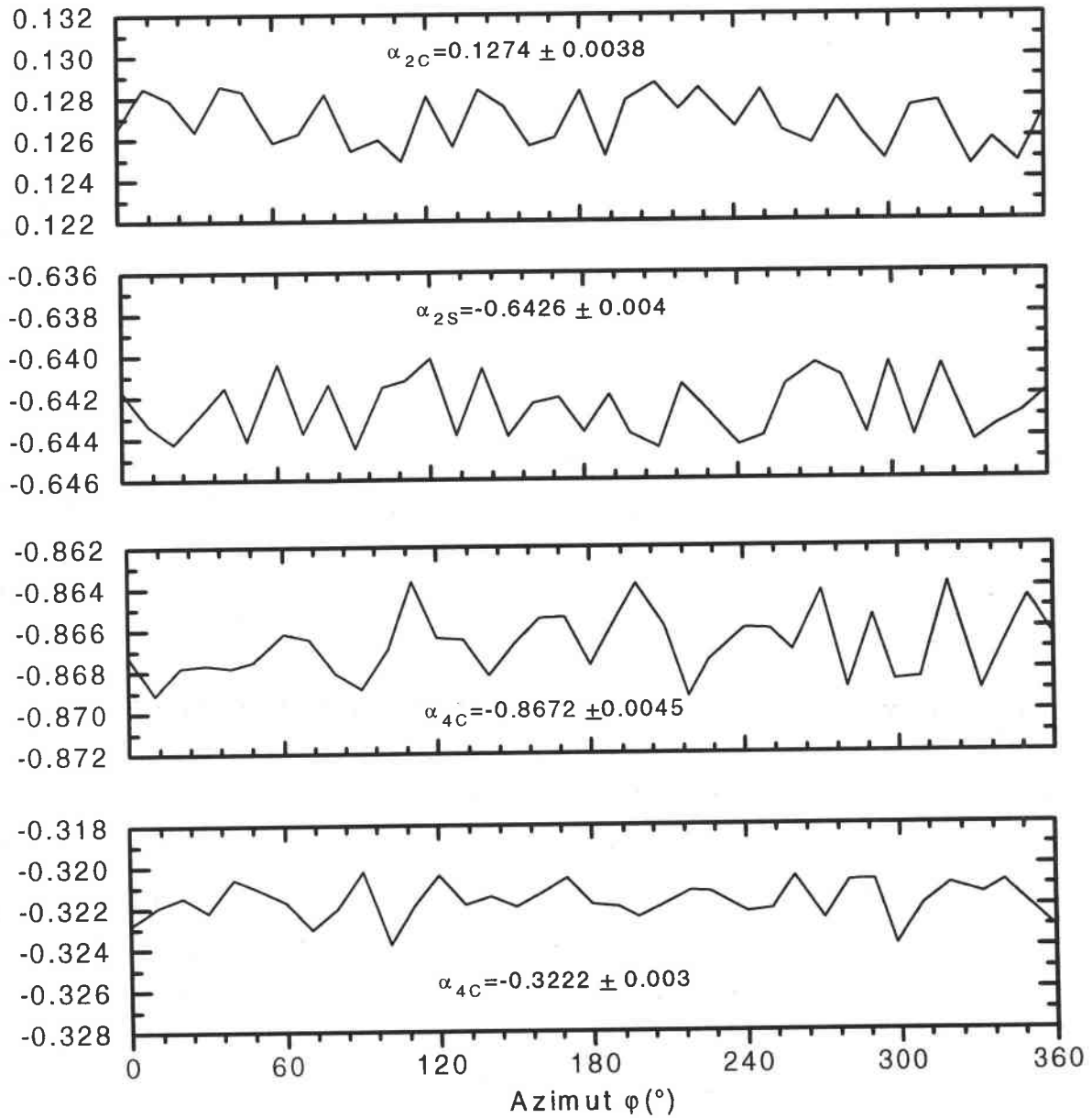


Figure 4.8: Sensibilité de l'ellipsomètre à la mesure en fonction de l'angle de rotation de l'échantillon  $\varphi$ .

La sensibilité à la mesure en fonction de l'azimut est de l'ordre de  $10^{-3}$ . Pour se prononcer sur cette sensibilité, nous la comparons avec la précision que peut atteindre notre ellipsomètre en ligne. Dans le montage en ligne, les éléments de l'ellipsomètre sont alignés et l'échantillon n'est autre que l'air. Le plan d'incidence et la réflexion n'existent plus. Dans ces conditions,  $\tan \Psi$  et  $\cos \Delta$  doivent être égaux à 1. Ce test constitue un excellent moyen pour qualifier notre ellipsomètre aux mesures de matériaux nécessitant des réglages de précision comme certains substrats.

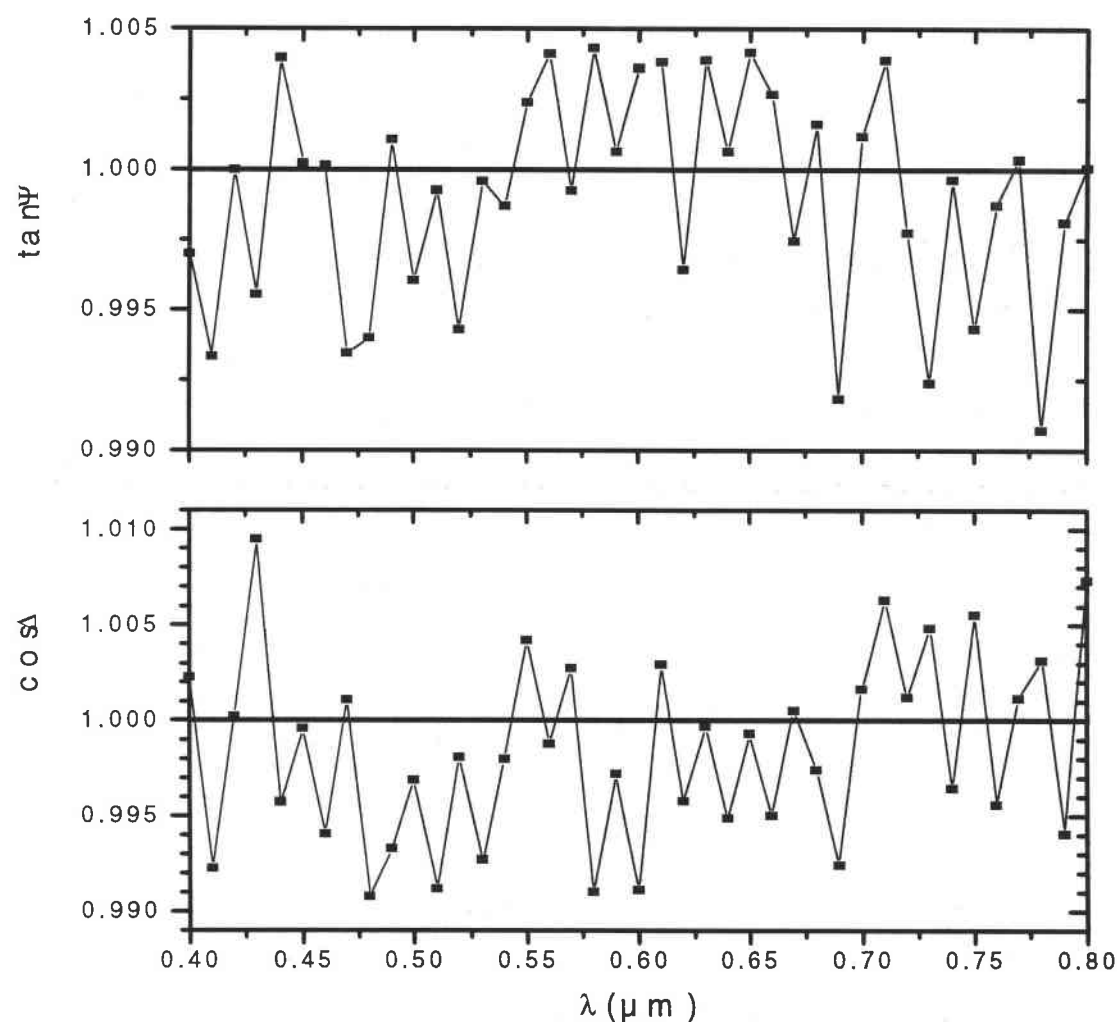


Figure 4.9: Mesure de  $\tan \Psi$  et  $\cos \Delta$  - Montage en ligne.

Nous avons présenté sur la figure 4.9, le spectre en ligne. Les paramètres  $\tan \Psi$  et  $\cos \Delta$  sont bien centrés autour de 1 avec une erreur de l'ordre  $10^{-3}$ . Il en résulte que l'erreur de sensibilité à la mesure en fonction de l'azimut est tout à fait acceptable en comparaison avec la précision que peut atteindre l'ellipsomètre en ligne.

### Procédures expérimentales et numériques

La réflexion de la lumière blanche sur  $HgI_2$  est très faible, et c'est pour cette raison que nous utilisons tout d'abord un laser vert. Dès lors, le faisceau réfléchi est plus intense et donc il est possible de le repérer convenablement. Ensuite nous substituons au laser la lampe Xénon à l'aide d'un jeu de miroirs sans perturber l'angle d'incidence. La procédure permettant de remonter aux indices complexes ordinaire et extraordinaire  $n_o - ik_o$  et  $n_e - ik_e$  pour un substrat uniaxe avec l'axe optique parallèle à la surface est la suivante [106].

Nous mesurons d'abord les angles ellipsométriques à un certain angle d'incidence (par exemple  $\theta_1 = 70^\circ$ ) pour la position où l'axe optique est parallèle au plan d'incidence ( $\varphi_1 = 0$ ). Une deuxième mesure est effectuée avec le même angle d'incidence mais pour une orientation de l'axe optique à  $90^\circ$  de la position précédente ( $\varphi_2 = \Pi/2$ ): l'axe optique est alors perpendiculaire au plan d'incidence. Nous obtenons deux valeurs de  $\tan \Psi$  :  $\tan \Psi(\theta_1 = 70^\circ, \varphi_1 = 0)$  et  $\tan \Psi(\theta_1 = 70^\circ, \varphi_2 = 90^\circ)$  et deux valeurs de  $\cos \Delta$  :  $\cos \Delta(\theta_1 = 70^\circ, \varphi_1 = 0^\circ)$  et  $\cos \Delta(\theta_1 = 70^\circ, \varphi_2 = 90^\circ)$ . Ces mesures sont insuffisantes pour déterminer les quatre indices de réfraction principaux. C'est pourquoi, nous effectuons une mesure à un autre angle d'incidence (par exemple  $\theta_2 = 60^\circ$ ) avec les mêmes orientations de l'axe optique du cristal qu'auparavant. Au total, nous obtenons respectivement quatre valeurs mesurées de  $\tan \Psi$  et quatre valeurs de  $\cos \Delta$ .

Après quoi les indices optiques s'obtiennent par un calcul numérique. Dans ce but, nous avons utilisé un algorithme non linéaire basé sur la méthode du Simplex [63], les mesures ellipsométriques étant exploitées longueur d'onde par longueur d'onde. La fonction définie pour notre problème puis minimisée est

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^2 \sum_{j=1}^2 \left( \left[ \frac{\tan \Psi^e(\Phi_i, \varphi_j) - \tan \Psi^c(\Phi_i, \varphi_j)}{\sigma_{\tan \Psi}} \right]^2 + \left[ \frac{\cos \Delta^e(\Phi_i, \varphi_j) - \cos \Delta^c(\Phi_i, \varphi_j)}{\sigma_{\cos \Delta}} \right]^2 \right), \quad (4.1)$$

où  $(\tan \Psi^e, \cos \Delta^e)$  sont les angles ellipsométriques mesurés par PRPSE et  $(\tan \Psi^c, \cos \Delta^c)$  sont les valeurs de ces angles calculées à partir de l'équation (B.2.1) pour  $\varphi_1 = 0^\circ$  et (B.2.2)

pour  $\varphi_2 = 90^\circ$ . Enfin,  $\sigma_{\tan \Psi}$  et  $\sigma_{\cos \Delta}$  représentent respectivement les écarts quadratiques moyens de  $\tan \Psi^e$  et  $\cos \Delta^e$ . La détermination expérimentale en chaque point de mesure de  $\sigma_{\tan \Psi}$  et  $\sigma_{\cos \Delta}$  est difficile. De plus, les incertitudes ne sont pas identiques pour toutes les mesures. Lorsque  $\cos \Delta$  s'approche de  $\pm 1$ ,  $\sigma_{\tan \Psi}$  et  $\sigma_{\cos \Delta}$  varient fortement. C'est pourquoi, avec un ellipsomètre à polariseur tournant, il est préférable dans certaines zones spectrales d'utiliser directement les coefficients de Fourier  $\alpha_{2c}$ ,  $\alpha_{2s}$ ,  $\alpha_{4c}$  et  $\alpha_{4s}$  du signal plutôt que  $\tan \Psi$  et  $\cos \Delta$ .

### Résultats

Le cristal  $HgI_2$  est transparent dans la moitié du domaine spectral visible, et les valeurs de  $\cos \Delta$  s'approchent de  $\pm 1$ . Pour caractériser ce type de matériau, il est impératif de disposer de mesures de qualité et de choisir avec soin les angles d'incidence. En outre, pour éviter les réflexions parasites de la face arrière, nous avons été contraint de déposer une couche de carbone colloïdal sur la face arrière du cristal.

Cinq spectres ont été mesurés pour cinq angles d'incidence compris entre  $50^\circ$  et  $70^\circ$  avec un pas de  $5^\circ$ . Chacun d'eux comporte 51 points répartis entre 0,3 et 0,8  $\mu m$ . Sur les figures (4.10-4.11) sont représentés les spectres obtenus pour deux orientations particulières de l'échantillon par rapport au plan d'incidence ( $\varphi = 0^\circ$  : axe optique parallèle au plan d'incidence et  $\varphi = 90^\circ$  : axe optique normal à ce plan).

Nous constatons d'une part que les angles d'incidence  $60^\circ$ ,  $65^\circ$  et  $70^\circ$  donnent la meilleure sensibilité pour les paramètres mesurés, et d'autre part, un changement important de  $\cos \Delta$  à l'angle d'incidence  $70^\circ$ . Les mesures des données dans une plage angulaire proche  $70^\circ$  sont favorables pour étudier la surface de  $HgI_2$ , ceci est due au changement rapide des valeurs de  $\Delta$  [107].

Nous attribuons la faible sensibilité à  $50^\circ$  et  $55^\circ$  aux valeurs de  $\cos \Delta$  trop proches de  $-1$  dans l'ensemble du domaine spectral.

Nous avons poursuivi l'étude par l'exploitation numérique des spectres expérimentaux obtenus pour les angles d'incidence ( $60^\circ, 65^\circ, 70^\circ$ ). Même les spectres de faibles sensibilité ( $50^\circ, 55^\circ$ ) ont été exploités, permettant ainsi de comparer les résultats.

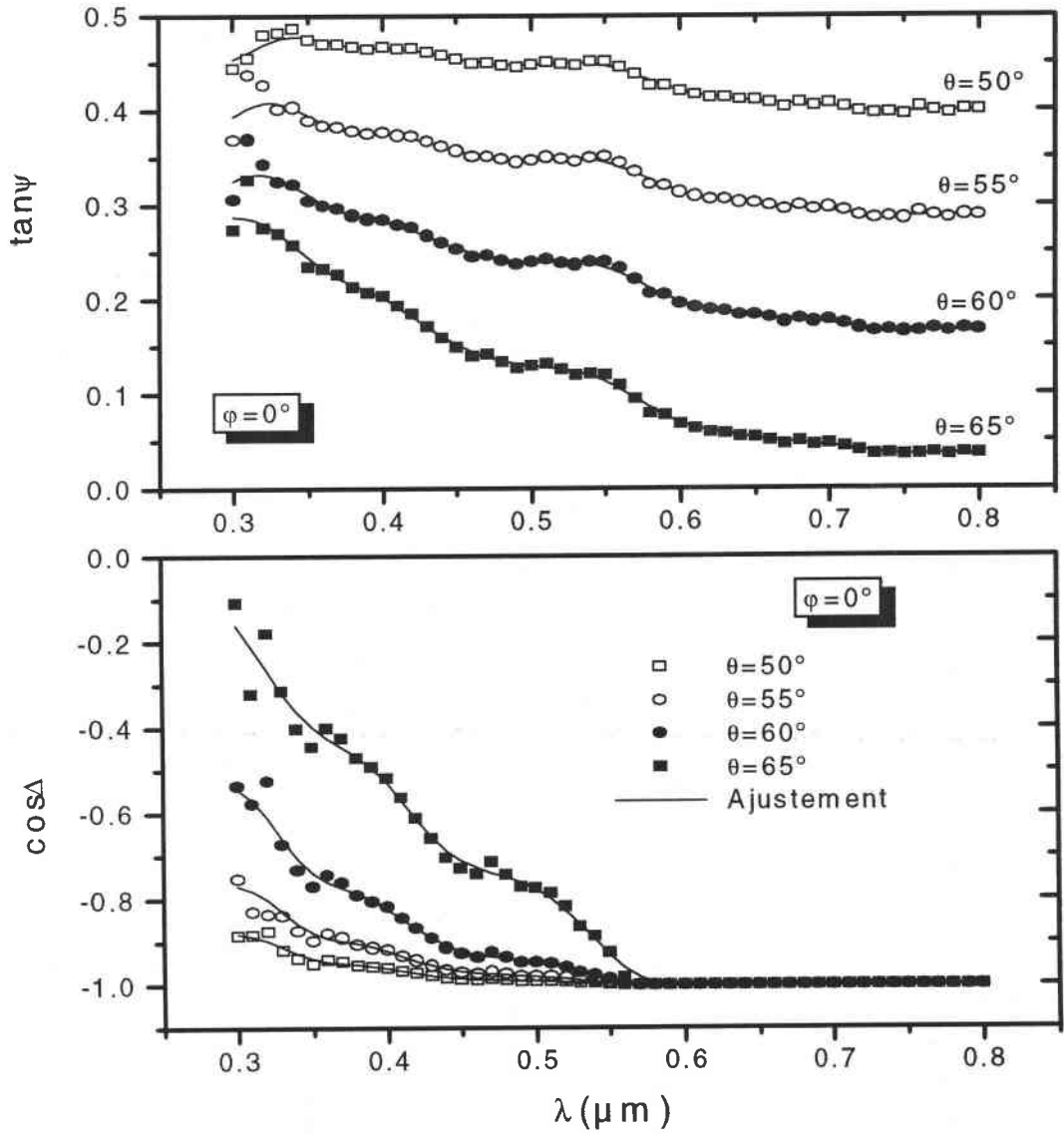


Figure 4.10: Spectres expérimentaux de  $HgI_2$  à plusieurs angles d'incidence :  $50^\circ$ ,  $55^\circ$ ,  $60^\circ$  et  $65^\circ$ . L'axe optique du cristal est parallèle au plan d'incidence ( $\varphi = 0^\circ$ ).

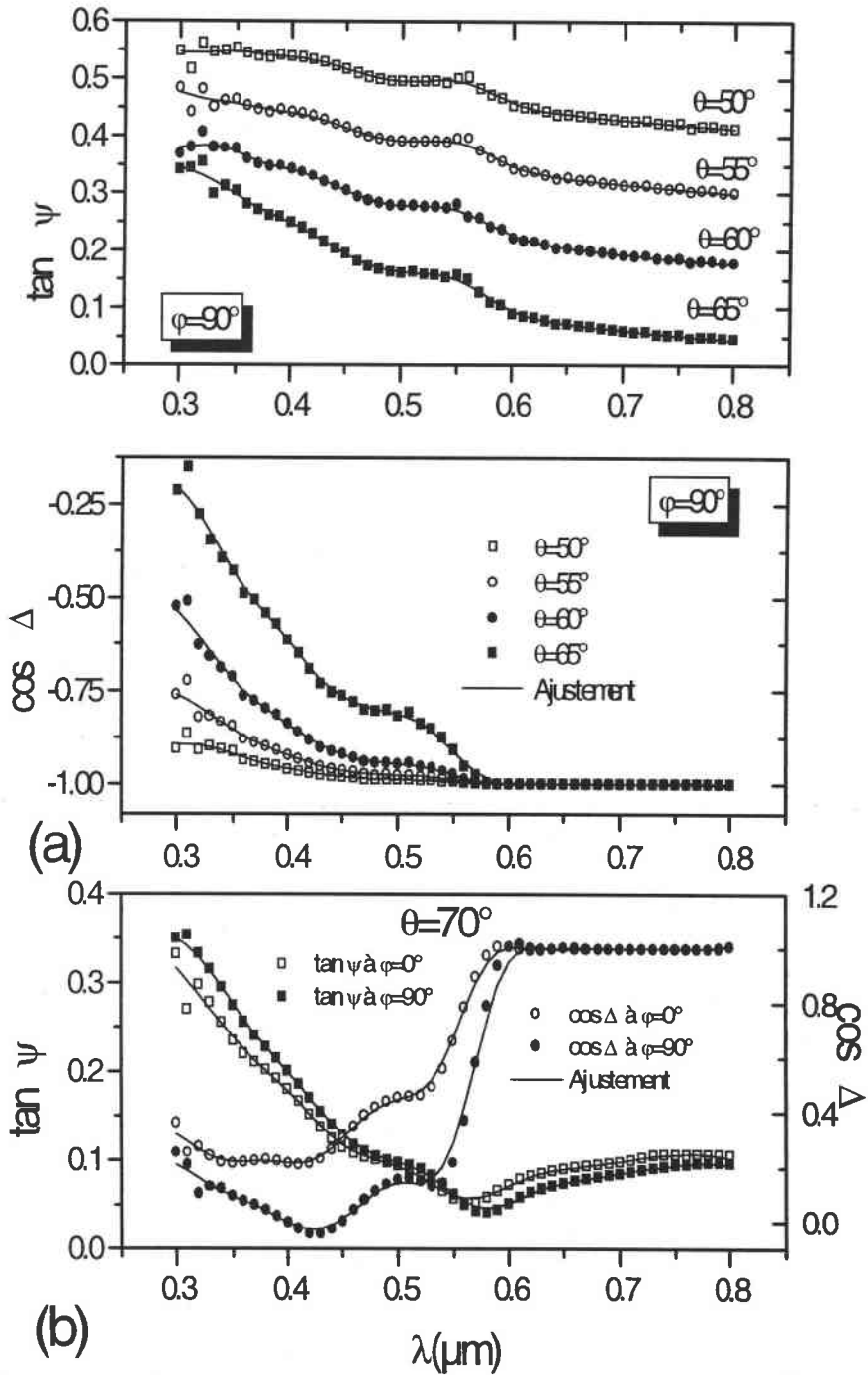


Figure 4.11: (a) Spectres expérimentaux de  $\text{HgI}_2$  avec axe optique normal au plan d'incidence à plusieurs angles d'incidence :  $50^\circ$ ,  $55^\circ$ ,  $60^\circ$ . et  $65^\circ$ . (b) Spectres expérimentaux de  $\text{HgI}_2$  à l'angle d'incidence de  $70^\circ$  pour deux orientations du cristal  $\varphi = 0^\circ$  et  $\varphi = 90^\circ$ .

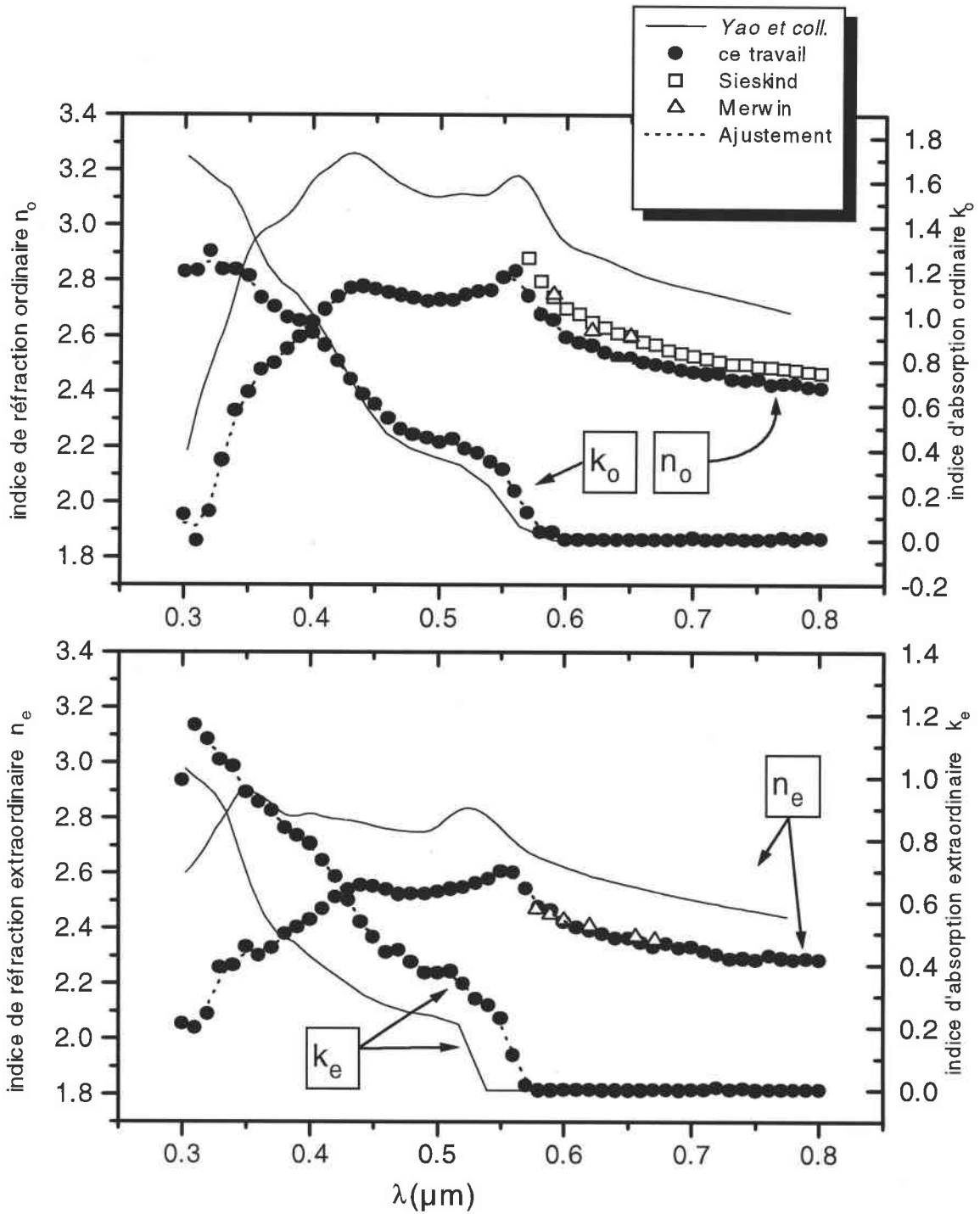
La difficulté majeure de notre méthode numérique fut le choix des valeurs initiales. Les valeurs de la littérature pour  $n_o$  et  $n_e$  ont été utilisées au départ du calcul numérique.

Les constantes optiques ordinaire et extraordinaire de  $\text{HgI}_2$  que nous avons déterminé sont présentées sur la figure (4.12). Nous avons évalué l'erreur sur  $n_i$  à  $\pm 0,020$  et celle sur  $k_i$  à  $\pm 0,026$  avec  $i=o,e$ . Par contre l'erreur atteint 0,09 dans l'intervalle de longueur d'onde  $0,30 - 0,34 \mu\text{m}$ . Nous procédons systématiquement à des tests concernant la fiabilité et la reproductibilité des résultats. Ce faisant, nous avons constaté un excellent accord entre les valeurs des indices  $n_o$ ,  $n_e$ ,  $k_o$  et  $k_e$  trouvés par combinaisons des angles d'incidences ( $70^\circ$ ,  $60^\circ$ ), ( $70^\circ$ ,  $65^\circ$ ) et ( $65^\circ$ ,  $60^\circ$ ).

Cependant, l'exploitation des spectres ( $50^\circ$ ,  $55^\circ$ ) diverge vers des valeurs aberrantes avec une forte incertitude. Dans cette configuration, les valeurs de  $k_o$  et  $k_e$  à priori voisines de zéro pour les longueurs d'ondes comprises entre  $0,6$  et  $0,8 \mu\text{m}$ , sont de l'ordre 0,2. Les erreurs expérimentales dans la mesure de  $\Delta$  par PRPSE sont proportionnelles à  $(\sin \Delta)^{-1}$ . Les erreurs expérimentales sur les spectres ( $50^\circ, 55^\circ$ ) sont excessivement importantes en raison des valeurs de  $\Delta$  atteignant  $180^\circ$  dans tout le domaine spectral étudié. C'est l'inconvénient principal d'un ellipsomètre à polariseur tournant. En effet, pour un substrat peu absorbant ou pour un film transparent déposé sur un substrat également transparent, le déphasage  $\Delta$  est généralement soit petit (quelques degrés), soit grand (proche de  $180^\circ$ ) et par conséquent,  $\cos \Delta \cong \pm 1$ , ce qui entraîne une forte incertitude sur  $\Delta$ . Récemment, les chercheurs ont réussi à réaliser ce type de mesures dans des conditions meilleures en incorporant un compensateur achromatique tel que le compensateur Babinet-Soleil [108] ou en interposant une lame retardatrice entre le polariseur et l'analyseur sur le trajet du faisceau [35]. Un rhomboèdre de Fresnel peut être également utilisé à la place d'une lame retardatrice [22].

Il faut noter que dans les conditions expérimentales (une surface de  $\text{HgI}_2$  plane et sans contamination) où nous avons mesuré les indices de réfraction complexes, il n'est pas nécessaire d'utiliser des modèles de films rugueux ou de milieux hétérogènes. Nos courbes d'indices ont été comparées à celles déjà publiées dans la littérature. Les valeurs de  $n_o$  et  $n_e$  sont très proches de celles trouvées par Sieskind *et col.* [19, 103] et Merwin [18]. Néanmoins, les résultats rapportés dans la référence [21] sont considérablement différents dans l'ensemble du domaine spectral utilisé dans notre travail. Leurs données ont été obtenues sur un échantillon de  $\text{HgI}_2$  chimiquement traité avec KI et rincé durant 2-3mn à l'eau déionisée. Avec





**Figure 4.12:** Constantes optiques ordinaire et extraordinaire de  $\text{HgI}_2$  en comparant avec les résultats de la littérature. L'erreur relative est de l'ordre de 0,02.

un tel traitement, il est difficile d'affirmer que les réponses ellipsométriques sont celles du substrat  $\text{HgI}_2$  uniquement. En effet, l'attaque chimique conduit à la formation du complexe  $[\text{KHgI}_3, \text{H}_2\text{O}]$ . Pour tenir compte de l'effet du KI, Yao *et col.* [21], ont utilisé un modèle de surface basé sur l'approximation du milieu effectif proposée par Bruggeman [109] (effective-medium approximation : EMA).

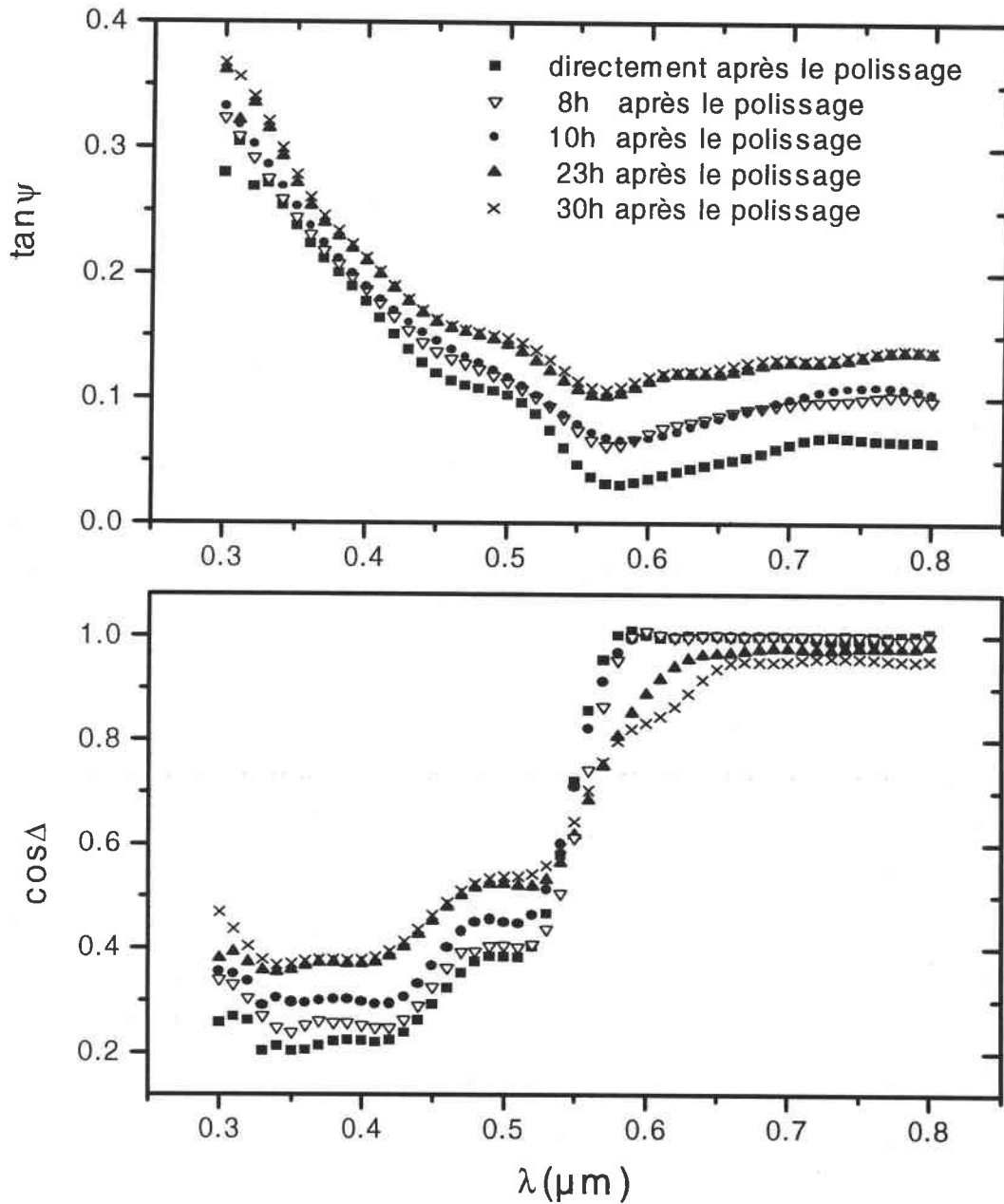
Une étude concernant la caractérisation de  $\text{HgI}_2$  traité au KI est décrite dans le paragraphe 4.8.

#### 4.7.4 Mise en évidence de la pollution progressive de la surface

Le problème expérimental rencontré lors des mesures ellipsométriques de  $\text{HgI}_2$  est que ce matériau réagit avec l'air même à température ambiante. Il a donc fallu prendre beaucoup de précautions pour limiter la formation d'une couche sur le substrat  $\text{HgI}_2$ . C'est pourquoi les mesures doivent être effectuées immédiatement après le polissage. Nous avons observé cette influence par ellipsométrie.

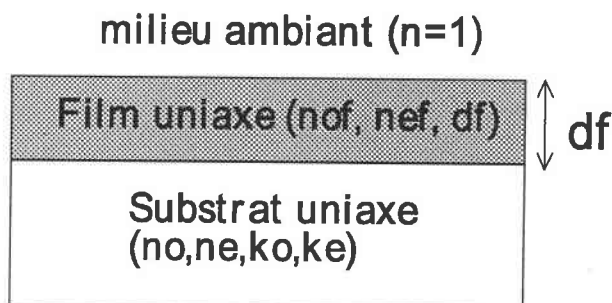
Dans le but d'étudier l'évolution de la surface des échantillons en fonction du temps, nous avons relevé  $\tan \Psi$  et  $\cos \Delta$  immédiatement après le polissage mécanique, après 8, 10, 23 et 30 heures d'exposition à l'air. À noter, que les conditions expérimentales étaient les mêmes pour les cinq spectres. L'échantillon étant resté sur le porte échantillon du goniomètre de l'ellipsomètre jusqu'à la fin de l'opération. Les cinq spectres ont été mesurés sur le même impact. Les mesures illustrées sur la figure (4.13) ont été réalisées à un angle d'incidence de  $70^\circ$  et à l'azimut  $\varphi = 0^\circ$ .

Nous n'avons observé aucun changement pour les mesures effectuées sur le substrat pendant 6 heures après le polissage. Cependant les variations deviennent de plus en plus importantes pour les spectres enregistrés après 6 heures. Un écart important est constaté entre les spectres mesurés directement après le polissage et les spectres obtenus 30 heures après le polissage. L'évolution des mesures de paramètres ellipsométriques en fonction du temps est bien visible dans l'ensemble du domaine spectral. Le décalage observé entre ces cinq spectres a pour origine la formation d'une couche en surface constituée d'un mélange de  $\text{HgI}_2$  et d'air. Malheureusement, nous ne connaissons pas la nature chimique de ce film. Nous pensons néanmoins que l'épaisseur augmente avec le temps d'exposition à l'air, ce qui pourrait expliquer les variations représentées sur la figure (4.13).



**Figure 4.13:** Comparaison entre les spectres expérimentaux de  $\tan \Psi$  et de  $\cos \Delta$  à l'angle d'incidence  $70^\circ$  et à  $\varphi = 0^\circ$  réalisés sur  $HgI_2$  directement après polissage puis après 30 heures d'exposition à l'air.

Le modèle que nous proposons pour interpréter les spectres obtenus sur un échantillon de  $HgI_2$  30h après le polissage est le suivant :



La couche est supposée transparente au-delà de  $0,56 \mu m$ , l'indice de réfraction décroît régulièrement avec la longueur d'onde. Ce comportement peut être décrit par la loi de dispersion simplifiée de Cauchy :

$$n_{of} = a_o + \frac{b_o}{\lambda^2},$$

$$n_{ef} = a_e + \frac{b_e}{\lambda^2}.$$

Les axes optiques du film et du substrat sont supposés parallèles à la surface et parallèles entre eux. Les paramètres expérimentaux sont l'angle d'incidence  $\theta$  et la longueur d'onde  $\lambda$ . Les indices complexes  $n_o - ik_o$  et  $n_e - ik_e$  du substrat sont connus, l'épaisseur  $d_f$  et les paramètres  $a_o$ ,  $a_e$ ,  $b_o$  et  $b_e$  de la loi de Cauchy pour les indices de réfraction ordinaire  $n_{of}$  et extraordinaire  $n_{ef}$  du film sont recherchés par inversion du modèle de l'échantillon.

Connaissant les indices du substrat, nous pouvons effectuer une régression sur les paramètres de la loi et sur l'épaisseur du film, de façon à minimiser l'écart entre les spectres expérimentaux et simulés. À noter que la régression est effectuée sur l'ensemble des données mesurées  $\tan \Psi$  et  $\cos \Delta$ . L'ajustement de ce modèle aux données expérimentales mène aux paramètres récapitulés dans le tableau (4.2).

L'inversion du modèle de l'échantillon s'effectue en deux étapes. Au départ nous lançons une recherche sur les cinq inconnus  $a_o$ ,  $a_e$ ,  $b_o$ ,  $b_e$  et l'épaisseur  $d_f$ . Le résultat de cette première étape permet d'avoir une estimation sur l'épaisseur. Ensuite nous fixons l'épaisseur et nous recherchons les quatre inconnus. Le processus numérique est répété en changeant à chaque fois la valeur de l'épaisseur jusqu'à ce que la valeur de  $\chi^2$  ait atteint la valeur minimale. Dans le tableau (4.2) figurent les résultats de la procédure d'ajustement par la loi de Cauchy du

premier ordre ainsi que la valeur de  $\chi^2$ .

| Epaisseur du film ( $d_f$ ) | Paramètres de la loi de Cauchy  | $\chi^2$             |
|-----------------------------|---|----------------------|
| 0,0094 $\mu m$              | $a_o = 1,401$ ; $a_e = 1,575$<br>$b_o = 0,052 \mu m^2$<br>$b_e = 0,043 \mu m^2$ | $10^{-4}$            |
| 0,0090 $\mu m$              | $a_o = 1,404$ ; $a_e = 1,573$<br>$b_o = 0,049 \mu m^2$<br>$b_e = 0,043 \mu m^2$ | $1,34 \cdot 10^{-3}$ |
| 0,0084 $\mu m$              | $a_o = 1,407$ ; $a_e = 1,565$<br>$b_o = 0,051 \mu m^2$<br>$b_e = 0,041 \mu m^2$ | $7,8 \cdot 10^{-3}$  |
| 0,0080 $\mu m$              | $a_o = 1,405$ ; $a_e = 1,572$<br>$b_o = 0,053 \mu m^2$<br>$b_e = 0,042 \mu m^2$ | $9,64 \cdot 10^{-3}$ |
| 0,0076 $\mu m$              | $a_o = 1,404$ ; $a_e = 1,571$<br>$b_o = 0,052 \mu m^2$<br>$b_e = 0,042 \mu m^2$ | $2,22 \cdot 10^{-2}$ |

**Tableau 4.2:** Résultats de la procédure d'ajustement par la loi de Cauchy du modèle à une seule couche de la surface de  $HgI_2$  30h après le polissage.

Il est intéressant de noter qu'un modèle film isotrope/substrat  $HgI_2$  a été examiné au début de cette étude. Les résultats d'ajustement montrent que cette hypothèse ne peut pas expliquer correctement les données expérimentales au vu de la valeur relativement élevée du  $\chi^2$ . En effet, les meilleurs résultats d'ajustement de ce modèle ont été trouvés pour un film

#### 4. Étude des propriétés optiques de la variété rouge de $\text{HgI}_2$

isotrope transparent dont les paramètres de la loi de Cauchy et l'épaisseur  $d$  du film sont :

$$\begin{aligned} a &= 2,401 \\ b &= 0,082\mu\text{m}^2 \\ d &= 0,0121\mu\text{m} \\ \chi^2 &= 1,13 \times 10^{-1} \end{aligned}$$

Les résultats montrent (voir tableau 4.2) sans ambiguïté que les meilleurs ajustements entre les valeurs expérimentales et simulées sont obtenus pour un film uniaxe transparent d'une épaisseur de 9,4 nm trouvée avec une valeur de  $\chi^2 = 10^{-4}$ . Le film uniaxe possède des constantes optiques  $n_{of}$  et  $n_{ef}$  dont les lois de dispersion ainsi déterminées sont représentées sur la figure 4.14.

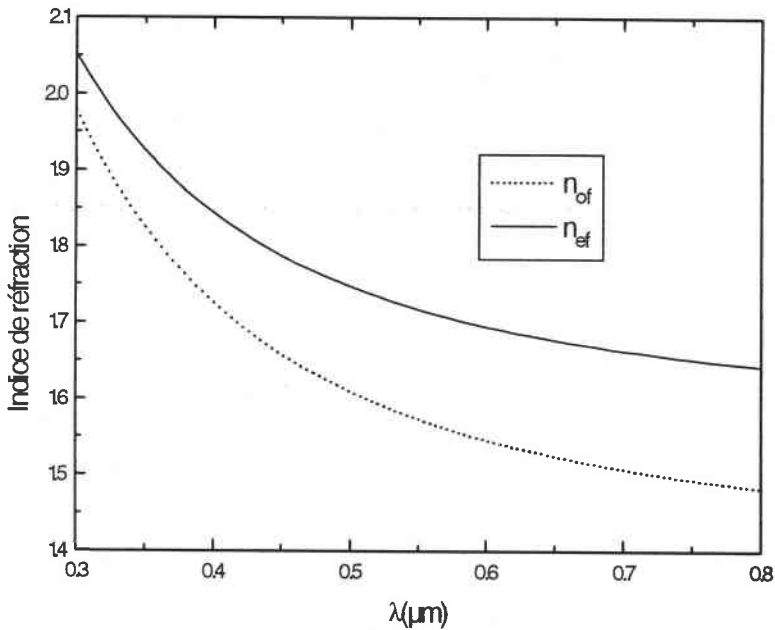
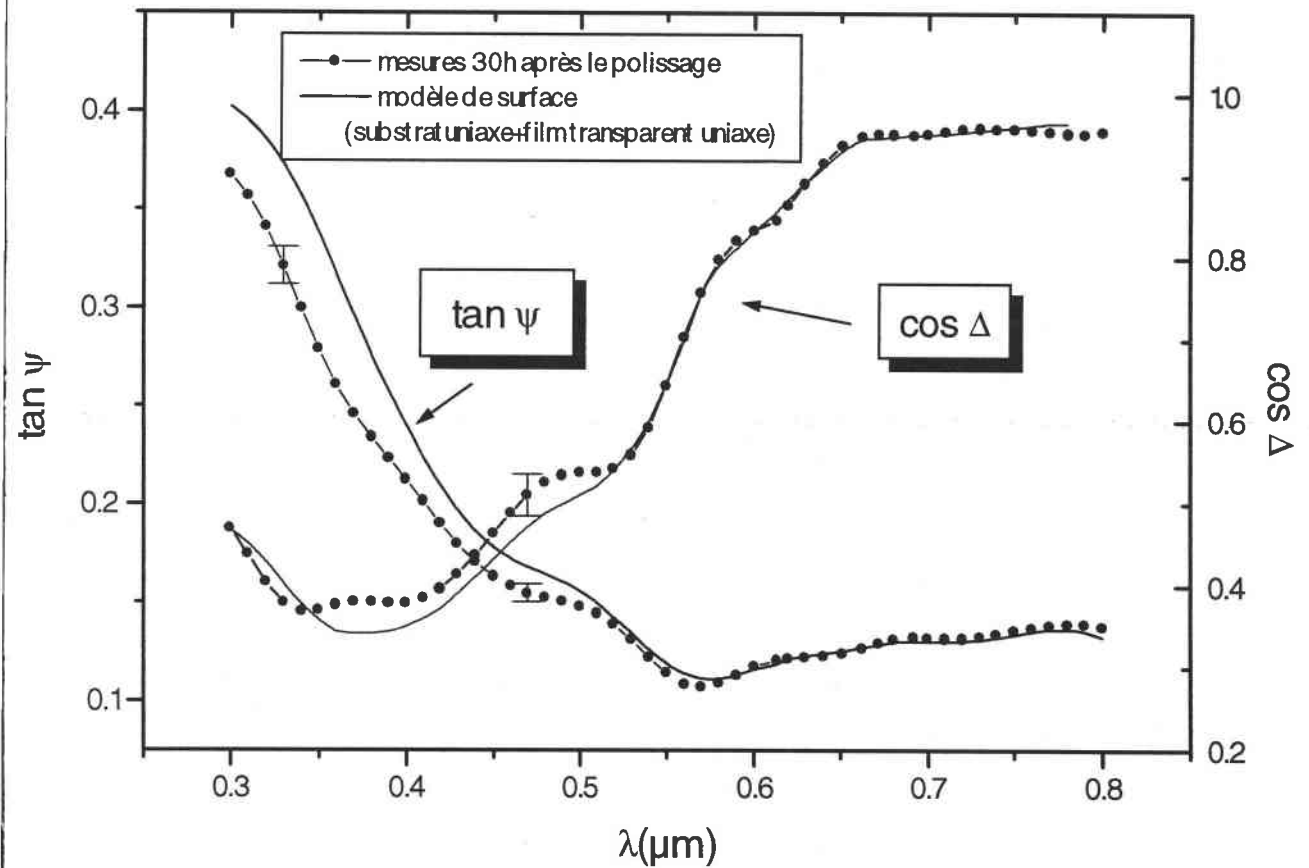


Figure 4.14: Indices ordinaire  $n_{of}$  et extraordinaire  $n_{ef}$  du film mesurés en fonction de  $\lambda$  sur les échantillons de  $\text{HgI}_2$ .

Remarquons que ce film est un milieu positif ( $n_{of} < n_{ef}$ ), tandis que le substrat  $\text{HgI}_2$  est un milieu négatif dans le visible ( $n_e < n_o$ ), ceci peut se justifier par un changement de

l'orientation de l'axe optique du film et contredit alors l'hypothèse du départ que les axes optiques du substrat et du film sont parallèles entre eux.

Nous allons vérifier que les valeurs associées au modèle monocouche précédent permettent de reproduire de manière satisfaisante les angles ellipsométriques mesurés sur les échantillons de  $\text{HgI}_2$ . Sur la figure (4.15), les spectres expérimentaux de  $\tan \Psi$  et  $\cos \Delta$  réalisés sur  $\text{HgI}_2$  30 h après polissage sont comparés aux spectres théoriques calculés à partir d'un modèle de surface avec un film uniaxe transparent de 9,4 nm sur un substrat uniaxe



**Figure 4.15:** Comparaison entre les spectres expérimentaux de  $\tan \Psi$  et  $\cos \Delta$  réalisés sur  $\text{HgI}_2$  après polissage et des spectres calculés à partir d'un modèle de surface avec un film uniaxe transparent de 9,4 nm sur un substrat uniaxe  $\text{HgI}_2$ .

$\text{HgI}_2$ .

#### 4. *Étude des propriétés optiques de la variété rouge de HgI<sub>2</sub>*

---

Nous constatons qu'une meilleure corrélation est obtenue pour les spectres expérimentaux et simulés du côté des grandes longueurs d'onde. La différence observée entre les valeurs expérimentales et simulées pour les longueurs d'ondes  $\lambda \leq 0,55\mu\text{m}$  est probablement due à la formation d'un film uniaxe pas totalement transparent mais légèrement absorbant.



## 4.8 Caractérisation de surfaces de $\text{HgI}_2$ traitées avec une solution d'iodure de potassium

### 4.8.1 Confirmation de la présence du complexe $\text{KHgI}_3$ dans la littérature

Résumons d'abord quelques résultats d'études réalisées dans la littérature. Comme nous l'avons déjà mentionné au début de ce chapitre, l'iodure mercurique est un composé instable. La surface du cristal n'est ni parfaitement plane ni chimiquement parfaite. Le traitement de la surface des cristaux  $\text{HgI}_2$  avec des solutions aqueuses diluées d'iodure de potassium (KI) est l'un des procédés utilisés pour polir le composé  $\text{HgI}_2$  et pour protéger sa surface contre les détériorations chimiques.

Il a été reconnu depuis longtemps que les surfaces traitées sont généralement beaucoup moins endommagées que les surfaces clivées [110]. Récemment [111], des observations au microscope à force atomique (AFM) ont confirmé le rôle de l'attaque chimique au KI. La figure (4.16) regroupe trois images obtenues par cette technique et montre les états de surface de  $\text{HgI}_2$  avant le traitement, puis 12 minutes et 3 semaines après le traitement. Ces images ont été prises pour un cristal dont l'axe optique est normal à la surface, traité avec une solution de KI de 10%.

Il est clair que le traitement au KI laisse une surface propre et uniforme malgré la persistance de certains défauts locaux. Après un tel traitement, la dégradation de la surface n'est pas immédiate, mais la surface s'altère chimiquement au cours du temps (voir figure 4.16(c)).

La conséquence de ce traitement, est la formation du complexe  $[\text{KHgI}_3, \text{H}_2\text{O}]$ . La présence du complexe  $\text{KHgI}_3$  a été confirmé par Ponpon et Sieskind [112, 100]. Dans leur travaux, un examen par spectroscopie infrarouge (I.R.) a identifié ce complexe. Ensuite, des échantillons traités pendant 2 minutes dans une solution de 20% KI (sans rinçage avec  $\text{H}_2\text{O}$ ), ont fait l'objet d'analyses par le diffractomètre Siemens D500 à la longueur d'onde  $\lambda = 0,1789$  nm et à l'angle d'incidence  $0,4^\circ$ . Le résultat de ces études a clairement confirmé la présence du complexe  $\text{KHgI}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$ . D'autres expériences de diffraction électronique de haute énergie (3 MeV) ont confirmé la présence de ce complexe [100].

4. Étude des propriétés optiques de la variété rouge de  $\text{HgI}_2$

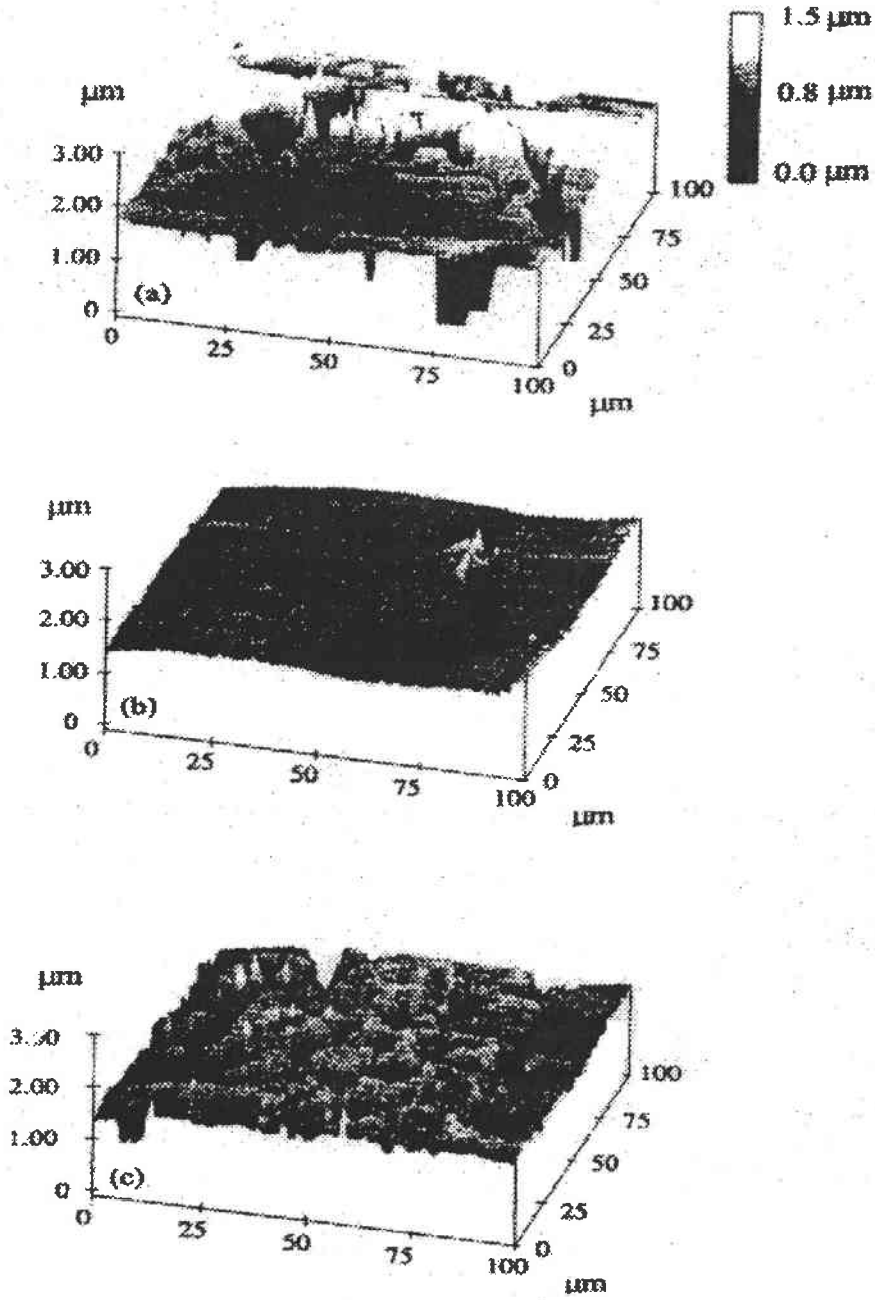


Figure 4.16: Images AFM obtenues sur la surface de  $\text{HgI}_2$  : (a) avant le traitement; (b) 12 minutes après le traitement; (c) 545 heures après le traitement avec 10% de KI [111].

L'attaque chimique au KI de la surface de  $HgI_2$  conduit à une diminution de son coefficient d'absorption. En effet, si  $HgI_2$  est absorbant dans la zone spectrale de courtes longueurs d'onde (au-dessous du gap  $\sim 0,55 \mu m$ ), le complexe  $[KHgI_3, H_2O]$  est quant à lui transparent. Une diminution de l'indice de réfraction est aussi fort probable. L'épaisseur du complexe dépend de la concentration en KI, de la durée de traitement et du temps de rinçage à l'eau déionisée. Dans l'hypothèse où il serait réparti de façon uniforme sur la surface, Ponpon et Sieskind [100] estiment son épaisseur à 20-25 nm pour un traitement de 20% avec une solution de KI. La nature chimique des liens entre ce complexe et  $HgI_2$  n'étant pas connue, on peut supposer que ces liens sont assez forts pour empêcher le détachement facile du complexe.

Afin de vérifier ces données par notre technique (PRPSE), de nouvelles mesures ellipsométriques ont été réalisées sur des échantillons (dont l'axe optique est parallèle à la surface) traités avec une solution de KI.

## 4.8.2 Caractérisation du complexe $KHgI_3$ formé sur la surface

### Préparation des échantillons

Les échantillons sont immergés dans des solutions d'iodure de potassium (KI) à concentrations de 20%, pendant des intervalles de temps variant entre 60 et 180 secondes, puis rincés à l'eau déionisée durant 20 secondes environ et séchés. Les mesures ellipsométriques sur des échantillons traités avec une solution de KI mais sans rinçage avec  $H_2O$  n'ont pu être exploités en raison de la faible réflexion de la lumière sur la surface. C'est pourquoi il est recommandé de rincer avec  $H_2O$  et sécher les échantillons traités surtout si on désire effectuer des mesures spectroscopiques. En effet, le problème posé par la faible réflexion peut se résoudre en utilisant un laser (HeNe 632,8 nm par exemple), le faisceau réfléchi devient alors beaucoup plus intense. Cependant, pour des raisons de modélisation, il est préférable de réaliser des mesures spectroscopiques.

### Mesures ellipsométriques spectroscopiques

L'intérêt de cette étude est de pouvoir accéder aux constantes optiques du complexe formé ainsi qu'à son épaisseur.

Les mesures spectroscopiques ont été réalisées par ellipsométrie conventionnelle. En effet, le cristal est orienté de manière à ce que son axe optique soit perpendiculaire au plan

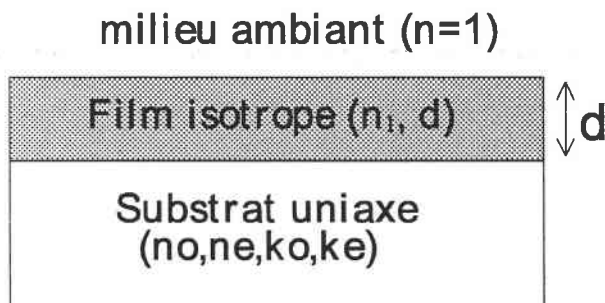
#### 4. Étude des propriétés optiques de la variété rouge de $HgI_2$

d'incidence. Dans ce cas, la matrice de Jones de réflexion est diagonale. Les spectres de  $\tan \psi$  et  $\cos \Delta$  ont été établis directement après le traitement chimique avec une solution de 20% de KI et le rinçage avec de l'eau déionisée pendant 20 secondes.

Sur la figure 4.17 sont représentées les valeurs expérimentales des paramètres ellipsométriques à l'angle d'incidence  $\theta = 70^\circ$  et à l'azimut  $\varphi = 90^\circ$ , après traitement par KI de 60, 120, 150 et 180 secondes. Les résultats présentés sur la figure 4.17 ont été obtenus en effectuant la moyenne des mesures de  $\tan \psi$  et  $\cos \Delta$  pour les deux positions de l'analyseur  $A=45^\circ$  et  $-45^\circ$  (méthode de mesure double-zone).

Notons les grandes variations des spectres ellipsométriques en fonction du temps de traitement. Les paramètres ellipsométriques dépendent de la qualité et la planéité de la surface. C'est pourquoi les cristaux de  $HgI_2$  ont subi tout d'abord un polissage mécanique avant le traitement au KI. Les quatre spectres sont obtenus pour le même échantillon en maintenant le même impact du faisceau incident sur la surface.

Le modèle utilisé pour exploiter ces spectres et caractériser le film formé à la surface est le suivant :

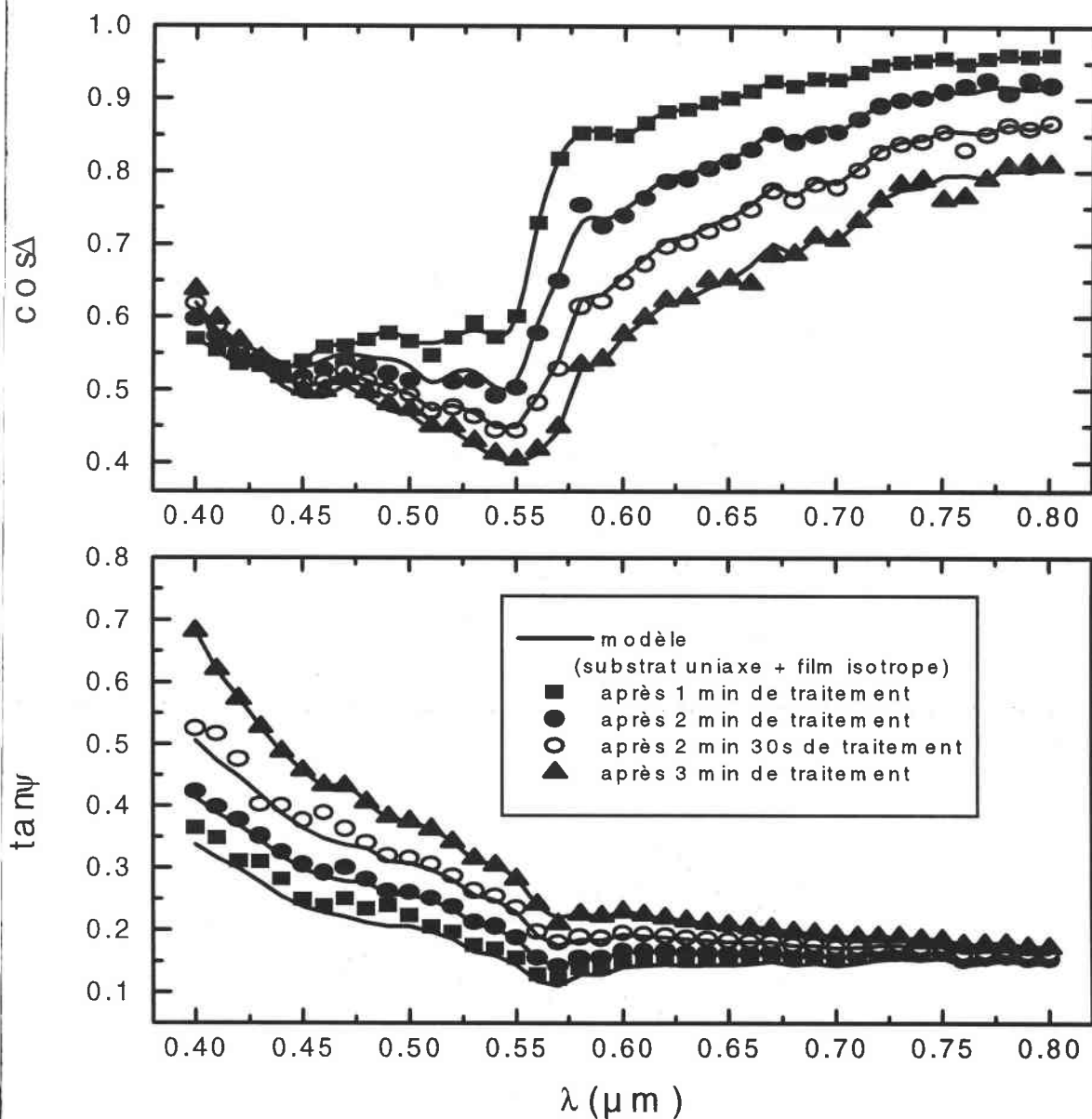


L'indice de réfraction  $n_1$  est réel dans le domaine spectral ( $0,4 - 0,8 \mu\text{m}$ ) et suit la loi de Cauchy simplifiée de la forme :

$$n_1 = a + \frac{b}{\lambda^2}. \quad (4.2)$$

Il faut noter qu'une loi de Cauchy plus complexe n'améliore pas l'ajustement de façon significative compte tenu du nombre élevé de paramètres à déterminer.

Les paramètres d'ajustement aux données expérimentales sont indiquées dans le tableau 4.3.



**Figure 4.17:** Comparaison entre les spectres expérimentaux de  $\tan \psi$  et  $\cos \Delta$  mesurés et modélisés pour l'échantillon  $HgI_2$  traité avec une solution de KI puis rincé à l'eau déionisée pendant 20 s. Une bonne corrélation est obtenue entre les spectres expérimentaux et simulés.

#### 4. Étude des propriétés optiques de la variété rouge de $HgI_2$

| temps de traitement | complexe $KHgI_3, H_2O$                              | $\chi^2 \times 10^{-4}$ |
|---------------------|--|-------------------------|
| 1 min.              | a=1,048<br>b=0,073 $\mu m^2$<br>d=19,2 $\pm$ 0,87 nm | 84,99                   |
| 2 min.              | a=1,049<br>b=0,079 $\mu m^2$<br>d=27,7 $\pm$ 1,13 nm | 31,31                   |
| 2 min. 30s          | a=1,057<br>b=0,070 $\mu m^2$<br>d=38,2 $\pm$ 1,44 nm | 69,12                   |
| 3 min.              | a=1,042<br>b=0,072 $\mu m^2$<br>d=40,1 $\pm$ 1,50 nm | 46,41                   |

**Tableau 4.3:** Paramètres ajustés de modèles de surface appliqués au cristal  $HgI_2$  après le traitement chimique et valeurs de la fonction écart  $\chi^2$  associées au modèle.

Nous analysons les données du tableau 4.3 en deux parties.

#### Indice de réfraction du complexe

Les variations de l'indice de réfraction de la couche surfacique transparente évaluées entre 0,4 et 0,8  $\mu m$  sont présentées sur la figure 4.18 et comparées avec les valeurs obtenues à l'aide d'un spectrophotomètre Beckman à double faisceau couvrant le domaine spectral de 0,25 à 3  $\mu m$  [76]. Cet appareil est équipé d'une sphère intégrante permettant les mesures du facteur de réflexion (pouvoir réflecteur) et d'en déduire l'indice de réfraction dans une zone transparente. Les indices obtenus par ces deux méthodes sont comparables. Nous notons ici trois points essentiels à savoir :

- les mesures effectuées avec le dispositif Beckman ont été réalisées sur des cristaux orientés perpendiculairement à l'axe optique, tandis que les mesures ellipsométriques ont été achevées sur des cristaux taillés parallèlement à l'axe.

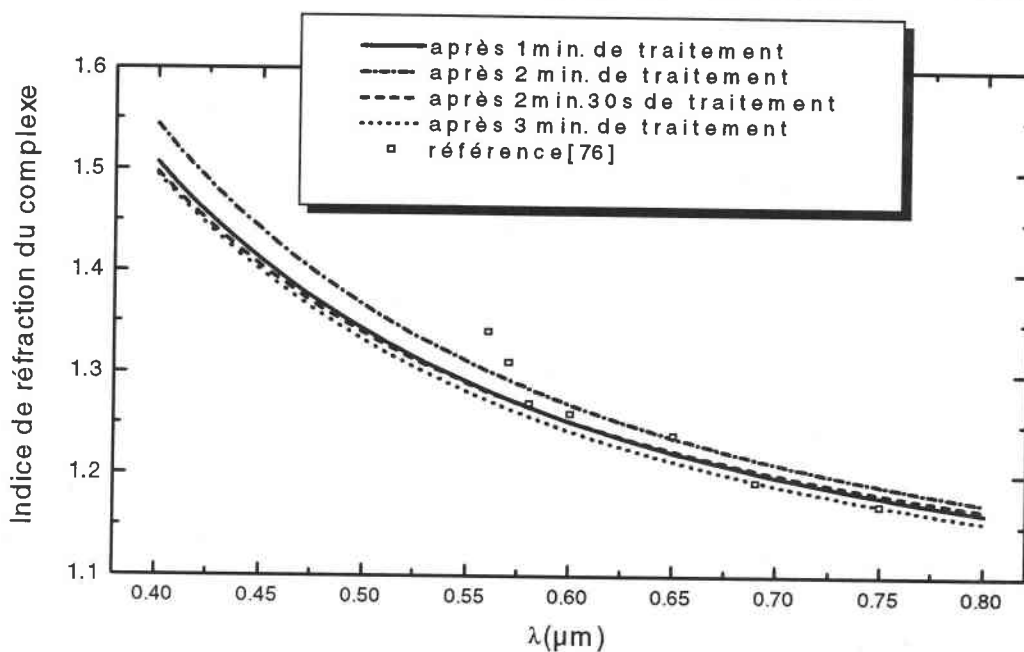


Figure 4.18: Indice de réfraction du complexe formé sur la surface de  $HgI_2$ .

- l'indice du complexe déterminé par les deux techniques est un indice apparent, puisque l'habillement en surface peut fortement conduire à une structure biaxe.
- La formation du complexe provoqué par l'attaque chimique au KI, peut être observée directement par la modification du pouvoir réflecteur. En effet, ce film complexe diminue le pouvoir réflecteur de 10% [76].

Les valeurs des indices de réfraction du complexe trouvées sont proches de celles de l'eau à  $20^\circ$  [113] comme le montre le tableau 4.4. Cela prouve que le complexe retient une grande quantité d'eau. En effet, le complexe est hygroscopique, il peut maintenir une grande quantité d'eau et même en adsorber de l'atmosphère.

Par chauffage à  $100-105^\circ$  ou même par abandon sous vide dans un dessiccateur à température ordinaire, ce complexe perd lentement la molécule d'eau qu'il contient et se décompose en  $HgI_2$  et KI, ce qui montre bien que la molécule d'eau fait partie intégrante d'anion complexe [115]. La mise d'un échantillon  $HgI_2$  sous vide en contact avec le palladium (Pd) fournit une opportunité d'enlever efficacement l'excès d'eau du complexe. Cependant, après un certain temps, le complexe restant peut se dissocier, donnant KI,  $HgI_2$  et  $H_2O$  [114].

#### 4. Étude des propriétés optiques de la variété rouge de $HgI_2$

| $\lambda(\mu\text{m})$ | $n(H_2O)$ | $n_1(KHgI_3.H_2O)$ | $n - n_1$ |
|------------------------|-----------|--------------------|-----------|
| 0,434                  | 1,3403    | 1,435              | -0,094    |
| 0,441                  | 1,3398    | 1,423              | -0,083    |
| 0,468                  | 1,3381    | 1,381              | -0,042    |
| 0,48                   | 1,3375    | 1,364              | -0,026    |
| 0,486                  | 1,3370    | 1,357              | -0,019    |
| 0,533                  | 1,3349    | 1,304              | 0,030     |
| 0,535                  | 1,3348    | 1,303              | 0,031     |
| 0,589                  | 1,333     | 1,258              | 0,075     |

**Tableau 4.4:** Comparaison entre les valeurs des indices de réfraction de l'eau à 20° et du complexe formé sur la surface.

#### Épaisseur du complexe

Nous allons comparer les valeurs de l'épaisseur de la couche formée sur la surface obtenues par ellipsométrie et celles provenant de mesures de la masse résiduelle du complexe. Les travaux de Ponpon *et col.* [100] montrent que les valeurs de la masse résiduelle du complexe  $KHgI_3.H_2O$  sont très fortement dépendantes de la concentration en KI, de la durée de traitement et du temps de rinçage. Sur la figure 4.19(a), est représenté l'évolution de la masse résiduelle du complexe en fonction du temps de traitement pour une concentration de KI de 20%, pour un temps de traitement de rinçage de 20 secondes. La masse résiduelle varie linéairement avec le temps de traitement  $t$  conformément à la loi  $m_e = 7t$  [100].

La figure 4.19(b) donne l'évolution de l'épaisseur du complexe en fonction de la durée de traitement comparée avec les valeurs obtenues à partir de la masse résiduelle. Ces points expérimentaux montrent bien que l'épaisseur croît linéairement en fonction du temps de



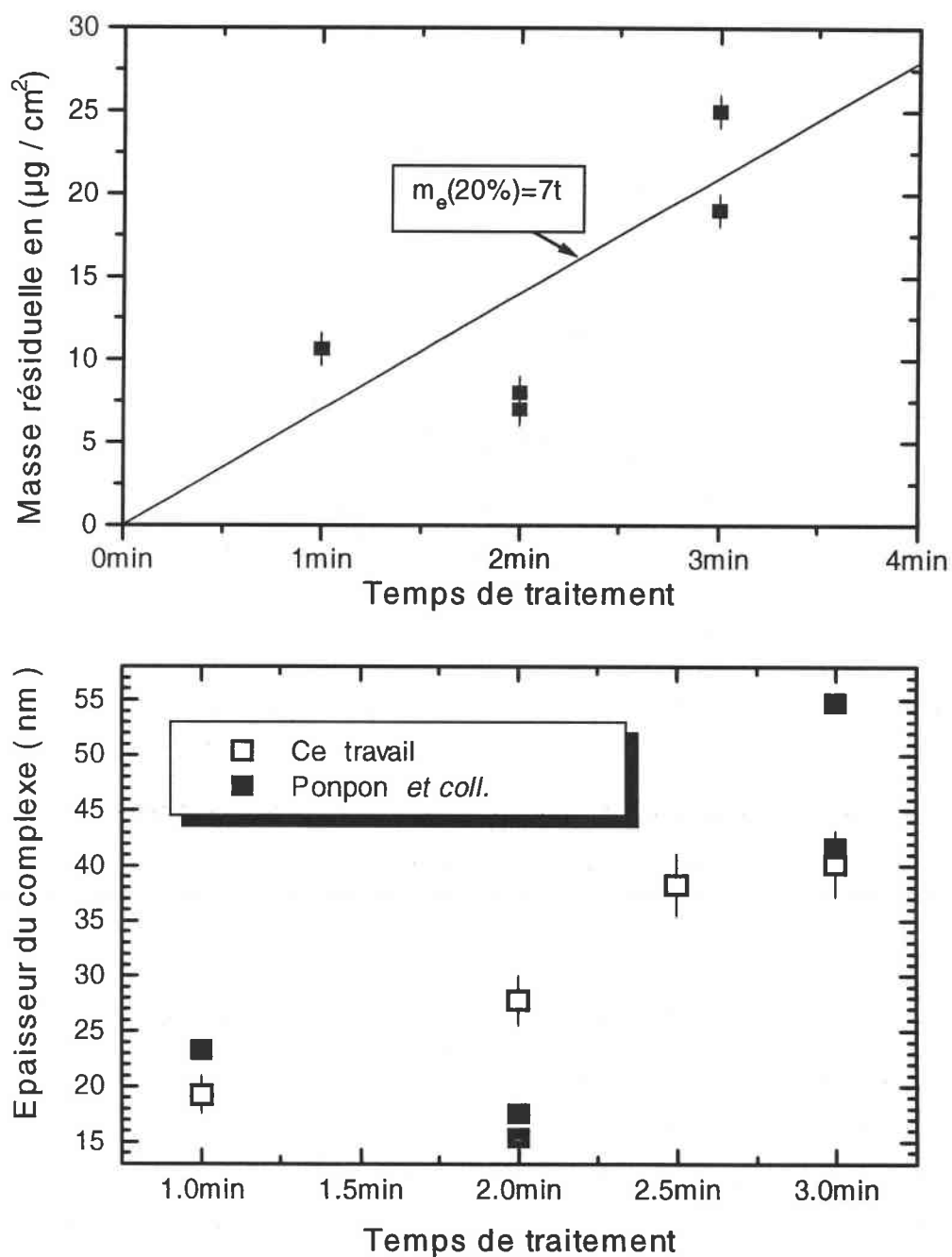


Figure 4.19: (a) Evolution de la masse résiduelle de  $KHgI_3$  en fonction du temps de traitement au KI [100]. (b) Evolution de l'épaisseur de  $KHgI_3$  en fonction du temps de traitement au KI.

traitement. Par conséquent, on peut estimer la masse relative d'une couche déposée, à partir de la durée du traitement.

En résumé, nous avons montré que l'attaque chimique par le KI provoque la formation d'une couche superficielle sur la surface de  $HgI_2$ . Les techniques utilisées dans la littérature telles que la spectroscopie d'absorption infrarouge, la diffraction aux R.X. sous incidence rasante et la diffraction électronique montrent la formation du complexe  $KHgI_3 \cdot H_2O$ . Nous avons montré par ellipsométrie que ce complexe est transparent dans le domaine spectral 0,40 – 0,80  $\mu m$  et évalué son indice de réfraction et son épaisseur.

## 4.9 Conclusion du quatrième chapitre

Nous avons montré qu'il est possible de mesurer les indices complexes ordinaire et extraordinaire d'un milieu anisotrope uniaxe par ellipsométrie conventionnelle.

Cependant, il est indispensable de disposer d'échantillons dont l'axe optique est parallèle à la surface. Il faut également choisir avec soin les angles d'incidence. Dans le cas où l'axe optique est perpendiculaire à la surface, l'inversion des équations ellipsométriques conduit à un système mal conditionné. La méthode a été appliquée à la détermination des constantes optiques de  $HgI_2$ .

L'étude de l'évolution de la surface en fonction du temps a mis en évidence la formation d'un film uniaxe sur la surface de  $HgI_2$  après polissage mécanique, d'une épaisseur de l'ordre de 9 nm après 30 heures d'exposition à l'air. Cependant, il reste à déterminer la nature chimique de ce film.

Les mesures ellipsométriques réalisées sur des cristaux de  $HgI_2$  traités avec une solution diluée d'iodure de potassium (KI) confirme la formation d'un film transparent identifié dans la littérature comme étant le complexe  $[KHgI_3 \cdot H_2O]$ . Nous avons évalué son indice de réfraction apparent entre 0,40 et 0,80  $\mu m$ , les valeurs trouvées sont très proche de celles de l'eau. Son épaisseur varie linéairement avec le temps de traitement, il peut atteindre environ 20 nm pour un traitement de 1 min dans une solution de 20% de KI.

## Chapitre 5

# Caractérisation de $\text{HgI}_2$ par ellipsométrie généralisée

### 5.1 Extension de PRPSE à l'ellipsométrie généralisée

Dans ce qui suit, nous allons décrire une nouvelle méthode permettant à l'ellipsomètre à polariseur tournant à trois éléments (PRPSE) de mesurer les éléments de la matrice de réflexion de Jones comportant des éléments non diagonaux différents de zéro.

Dans un premier temps nous présentons le calcul détaillé de l'expression du flux lumineux à travers l'ellipsomètre, dans le cas de la réflexion sur un échantillon anisotrope possédant la matrice de Jones de réflexion non diagonale. En suite, nous décrivons les résultats expérimentaux et nous donnons les différentes possibilités numériques pour inverser les équations non linéaires des coefficients de Fourier. Nous pouvons alors déterminer les constantes optiques de  $\text{HgI}_2$ , l'orientation de l'axe optique et les angles ellipsométriques généralisés.

Dans ce chapitre, nous nous sommes attachés à décrire les avantages de l'ellipsométrie généralisée comparée à l'ellipsométrie conventionnelle, dans la caractérisation des milieux anisotropes.

#### 5.1.1 Expression du flux : échantillon anisotrope avec la matrice de Jones de réflexion non diagonale

Pour le montage PRPSE et dans le cas d'un échantillon anisotrope avec la matrice de réflexion de Jones non diagonale, l'expression du vecteur de Jones à la sortie de l'analyseur  $\vec{E}_{so}$  s'écrit en fonction du vecteur de Jones incident  $\vec{E}_i$  et des matrices de Jones des éléments

optiques du montage :

$$\vec{E}_{so} = \{M_I R(A)\} \mathbf{R}_s \{R(-P_t) M_I R(P_t)\} \{R(-P) M_I\} \vec{E}_i, \quad (5.1)$$

avec

$$M_I = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix}, \quad R(\Theta) = \begin{bmatrix} \cos \Theta & \sin \Theta \\ -\sin \Theta & \cos \Theta \end{bmatrix}, \quad \mathbf{R}_s = \begin{bmatrix} R_{pp} & R_{ps} \\ R_{sp} & R_{ss} \end{bmatrix}.$$

$R(\Theta)$ ,  $R(-\Theta)$  et  $M_I$ , sont respectivement la matrice de rotation d'angle  $\Theta$ , la matrice de rotation inverse et la matrice idéale du polariseur.  $A$ ,  $P$  et  $P_t$  sont les azimuts des axes de transmission de l'analyseur, du polariseur et du polariseur tournant. La matrice  $\mathbf{R}_s$  est la matrice de réflexion caractérisant les propriétés optiques de l'échantillon. Le polariseur tourne avec une fréquence angulaire  $\Omega$  constante telle que  $P_t = \Omega t$ .

En développant l'expression (5.1), on obtient :

$$\vec{E}_{so} = \cos(P - \Omega t) \begin{bmatrix} R_1 \cos \Omega t + R_2 \sin \Omega t \\ 0 \end{bmatrix} \vec{E}_i, \quad (5.2)$$

avec

$$R_1 = R_{pp} \cos A + R_{sp} \sin A, \quad (5.3)$$

$$R_2 = R_{ps} \cos A + R_{ss} \sin A. \quad (5.4)$$

En multipliant l'expression (5.2) par son complexe conjugué, l'intensité correspondante s'écrit :

$$I = I_0 [a_0 + a_{2c} \cos 2\Omega t + a_{2s} \sin 2\Omega t + a_{4c} \cos 4\Omega t + a_{4s} \sin 4\Omega t], \quad (5.5)$$

avec :

$$a_0 = \frac{2|R_1|^2 + 2|R_2|^2 + (|R_1|^2 - |R_2|^2) \cos 2P + (\bar{R}_1 R_2 + R_1 \bar{R}_2) \sin 2P}{8}, \quad (5.6)$$

$$a_{2c} = \frac{|R_1|^2 - |R_2|^2 + (|R_1|^2 + |R_2|^2) \cos 2P}{4}, \quad (5.7)$$

$$a_{2s} = \frac{\bar{R}_1 R_2 + R_1 \bar{R}_2 + (|R_1|^2 + |R_2|^2) \sin 2P}{4}, \quad (5.8)$$

$$a_{4c} = \frac{(|R_1|^2 - |R_2|^2) \cos 2P - (\bar{R}_1 R_2 + R_1 \bar{R}_2) \sin 2P}{8}, \quad (5.9)$$

$$a_{4s} = \frac{(\bar{R}_1 R_2 + R_1 \bar{R}_2) \cos 2P + (|R_1|^2 - |R_2|^2) \sin 2P}{8}. \quad (5.10)$$

$I_0 a_0$  est l'intensité moyenne de la lumière incidente et  $\Omega t$  est l'azimut du polariseur tournant à l'instant  $t$ .

La quantité réellement mesurée est de la forme :

$$I_{mes} = \alpha_0 \left[ 1 + \frac{\alpha_{2c}}{\alpha_0} \cos 2P_t + \frac{\alpha_{2s}}{\alpha_0} \sin 2P_t + \frac{\alpha_{4c}}{\alpha_0} \cos 4P_t + \frac{\alpha_{4s}}{\alpha_0} \sin 2P_t \right] \quad (5.11)$$

avec  $\alpha_k = G \cdot a_k$  et  $k=0,2c,2s,4c,4s$

G représentant le gain de la chaîne de mesure.

On définit les rapports suivants :

$$\alpha'_{2c} = \frac{\alpha_{2c}}{\alpha_0} = \frac{a_{2c}}{a_0} = \frac{2(\alpha + \cos 2P)}{(2 + \alpha \cos 2P + \beta \sin 2P)}, \quad (5.12)$$

$$\alpha'_{2s} = \frac{\alpha_{2s}}{\alpha_0} = \frac{a_{2s}}{a_0} = \frac{2(\beta + \sin 2P)}{(2 + \alpha \cos 2P + \beta \sin 2P)}, \quad (5.13)$$

$$\alpha'_{4c} = \frac{\alpha_{4c}}{\alpha_0} = \frac{a_{4c}}{a_0} = \frac{(\alpha \cos 2P - \beta \sin 2P)}{(2 + \alpha \cos 2P + \beta \sin 2P)}, \quad (5.14)$$

$$\alpha'_{4s} = \frac{\alpha_{4s}}{\alpha_0} = \frac{a_{4s}}{a_0} = \frac{(\beta \cos 2P + \alpha \sin 2P)}{(2 + \alpha \cos 2P + \beta \sin 2P)}, \quad (5.15)$$

avec :

$$\alpha = \frac{|R_1|^2 - |R_2|^2}{|R_1|^2 + |R_2|^2} \quad \beta = \frac{\bar{R}_1 R_2 + R_1 \bar{R}_2}{|R_1|^2 + |R_2|^2}. \quad (5.16)$$

L'analyse de Fourier du flux lumineux permet la mesure des coefficients de Fourier  $\alpha'_{2c}$ ,  $\alpha'_{2s}$ ,  $\alpha'_{4c}$  et  $\alpha'_{4s}$ .

En ellipsométrie généralisée, la matrice de Jones n'est pas diagonale, les rapports complexes généralisés sont alors choisis pour la mesure [118]

$$\rho_{pp} = \frac{R_{pp}}{R_{ss}} = \tan \Psi_{pp} e^{i\Delta_{pp}}, \quad (5.17)$$

$$\rho_{ps} = \frac{R_{ps}}{R_{ss}} = \tan \Psi_{ps} e^{i\Delta_{ps}}, \quad (5.18)$$

$$\rho_{sp} = \frac{R_{sp}}{R_{ss}} = \tan \Psi_{sp} e^{i\Delta_{sp}}. \quad (5.19)$$

Les paramètres  $\alpha$  et  $\beta$  s'expriment sous la forme

$$\alpha = \frac{|\rho_{pp} + \rho_{sp} \tan A|^2 - |\rho_{ps} + \tan A|^2}{|\rho_{pp} + \rho_{sp} \tan A|^2 + |\rho_{ps} + \tan A|^2}, \quad (5.20)$$

$$\beta = 2Re \frac{[(\rho_{pp} + \rho_{sp} \tan A)(\rho_{ps} + \tan A)]}{|\rho_{pp} + \rho_{sp} \tan A|^2 + |\rho_{ps} + \tan A|^2}. \quad (5.21)$$

Ces paramètres  $\alpha$  et  $\beta$  sont les coefficients de Fourier d'un montage à polariseur tournant à deux éléments, où la matrice de réflexion de l'échantillon est non diagonale.

Les coefficients de Fourier mesurés  $\alpha'_{2c}$ ,  $\alpha'_{2s}$ ,  $\alpha'_{4c}$  et  $\alpha'_{4s}$  dépendent de la position de l'analyseur  $A$ , du polariseur  $P$  et des rapports complexes  $\rho_{pp}$ ,  $\rho_{ps}$  et  $\rho_{sp}$  (c'est-à-dire de l'angle d'incidence  $\theta$ , de l'orientation de l'échantillon).

Ces coefficients peuvent être développés en fonction des angles ellipsométriques généralisés. En effet, le calcul des paramètres  $\alpha$  et  $\beta$  donne :

$$\alpha = \frac{\alpha_1 - \alpha_2}{\alpha_1 + \alpha_2} \quad \text{et} \quad \beta = \frac{\beta_1 - \beta_2}{\alpha_1 + \alpha_2},$$

avec

$$\alpha_1 = \tan^2 \psi_{pp} + \tan^2 \psi_{sp} \tan^2 A + 2 \tan \psi_{pp} \tan \psi_{sp} \tan A \cos(\Delta_{pp} - \Delta_{sp}), \quad (5.22)$$

$$\alpha_2 = \tan^2 \psi_{ps} + \tan^2 A + 2 \tan \psi_{ps} \cos \Delta_{ps} \tan A, \quad (5.23)$$

$$\beta_1 = (\tan \psi_{pp} \cos \Delta_{pp} + \tan \psi_{sp} \cos \Delta_{sp} \tan A)(\tan \psi_{ps} \cos \Delta_{ps} + \tan A), \quad (5.24)$$

$$\beta_2 = (\tan \psi_{pp} \sin \Delta_{pp} + \tan \psi_{sp} \sin \Delta_{pp} \tan A) \tan \psi_{ps} \sin \Delta_{ps}. \quad (5.25)$$

Ainsi, dans cette configuration, les quantités mesurées  $\alpha'_{2c}$ ,  $\alpha'_{2s}$ ,  $\alpha'_{4c}$  et  $\alpha'_{4s}$  sont très sensibles aux éléments non diagonaux normalisés de la matrice de réflexion. Cette configuration de mesure est à la base de l'ellipsométrie généralisée.

### 5.1.2 Présentation du problème

Pour l'ellipsométrie conventionnelle, nous avons montré que les paramètres ellipsométriques  $\Psi$  et  $\Delta$  sont donnés analytiquement directement en fonction des coefficients de Fourier. Cependant, dans l'ellipsométrie généralisée, les équations (5.12-5.15) ne permettent pas de trouver de relations explicites entre les angles ellipsométriques généralisés et les coefficients de Fourier. Par conséquent, une approche numérique est nécessaire pour inverser ces équations et extraire les angles ellipsométrique généralisés  $\tan \psi_{pp}$ ,  $\tan \psi_{ps}$ ,  $\tan \psi_{sp}$ ,  $\cos \Delta_{pp}$ ,  $\cos \Delta_{ps}$  et  $\cos \Delta_{sp}$ .

Le nombre de paramètres intervenant sur les mesures des coefficients de Fourier, nous procure plusieurs possibilités d'inversion numérique. Ces paramètres sont  $A$ ,  $P$ ,  $\theta$  ainsi que l'orientation de l'échantillon. L'orientation de l'échantillon dans le cas d'un matériau anisotrope est primordiale. Généralement, l'orientation est donnée par deux angles d'Euler : l'angle entre l'axe optique et la normale à la surface de l'échantillon, et l'angle entre la projection de l'axe optique sur la surface de l'échantillon et la normale au plan d'incidence. Dans notre

cas expérimental, l'axe optique étant parallèle à la surface, l'orientation est déterminée uniquement par l'angle azimutal  $\varphi$ . Cet angle  $\varphi$  est défini comme étant l'inclinaison de l'axe optique par rapport au plan d'incidence.

Les angles ellipsométriques généralisés peuvent être déterminés par :

- Variation de l'azimut de l'analyseur (ou du polariseur)

D'après les expressions (5.12-5.21), pour mesurer  $\rho_{pp}$ ,  $\rho_{ps}$  et  $\rho_{sp}$ , il suffit de réaliser au moins trois mesures de  $\alpha'_{2c}$ ,  $\alpha'_{2s}$ ,  $\alpha'_{4c}$  et  $\alpha'_{4s}$  en fonction de l'angle de l'analyseur  $A$  (ou du polariseur  $P$ ), et d'effectuer une régression non linéaire pour retrouver la matrice de Jones normalisée.

- Variation de l'angle d'incidence  $\theta$

En faisant l'acquisition des coefficients de Fourier en fonction de  $\theta$ , il est possible théoriquement de remonter aux propriétés optiques du matériau. Cependant Aspnes [104] et De Smet [62] ont montré que cette étude ne permettait pas d'accéder aux constantes optiques d'un matériau uniaxe avec son axe optique perpendiculaire à la surface de l'échantillon.

- Variation de l'angle azimutal  $\varphi$

Cette méthode permet de remonter aux propriétés optiques du matériau par l'analyse des courbes  $\alpha'_{2c}$ ,  $\alpha'_{2s}$ ,  $\alpha'_{4c}$  et  $\alpha'_{4s}$  en fonction de  $\varphi$ . Pour cela, on compare les résultats expérimentaux aux résultats calculés.

Parmi ces possibilités, nous avons choisi l'azimut  $\varphi$  et les positions de l'analyseur et du polariseur  $A$  et  $P$  comme variables d'acquisition. Dans ce qui suit, nous détaillerons la méthode permettant de déterminer à la fois les constantes optiques du substrat anisotrope, et l'orientation de l'échantillon. Les résultats sont obtenus directement par l'analyse de Fourier, sans l'intermédiaire des angles ellipsométriques.

Les paramètres ellipsométriques généralisés sont aussi obtenus à partir de l'inversion des équations non linéaires des coefficients de Fourier.

Nous allons voir qu'avec cette nouvelle configuration généralisée de PRPSE, il est possible de mesurer les constantes optiques d'un substrat uniaxe en utilisant uniquement un angle d'incidence ( $70^\circ$  pour  $\text{HgI}_2$ ). Il est cependant nécessaire de faire varier l'orientation du polariseur et de l'analyseur.

Nous appliquons la technique à la détermination des constantes optiques de  $HgI_2$ . Ainsi nous pouvons comparer avec les résultats obtenus par ellipsométrie conventionnelle.

### 5.1.3 Développement expérimental

Expérimentalement, pour caractériser complètement la matrice de Jones d'un échantillon comportant des éléments non diagonaux non nuls, nous effectuons les mesures à l'angle d'incidence ( $\theta = 70^\circ$ ) pour chaque longueur d'onde et chaque angle azimutal  $\varphi$  ( $\varphi \neq 0$  ou  $90^\circ$ ) et pour au moins deux orientations du polariseur et de l'analyseur ( $P_1, P_2$ ) et ( $A_1, A_2$ ). Ici, les quantités mesurées sont les coefficients de Fourier.

Les meilleures réponses optiques ont été trouvées pour les orientations du polariseur fixe  $P=0^\circ$  et  $90^\circ$ .

#### Explication

Dans un milieu isotrope, le rapport complexe de la réflectance s'écrit

$$\rho = \chi_i/\chi_r = \tan \Psi e^{i\Delta} \quad \text{avec} \quad \chi_i = E_s^i/E_p^i \quad \text{et} \quad \chi_r = E_s^r/E_p^r.$$

Comme nous l'avons vu, la relation générale entre les vecteurs de Jones de la lumière incidente et réfléchi dans un milieu anisotrope est donnée par

$$\begin{bmatrix} E_p^r \\ E_s^r \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} R_{pp} & R_{ps} \\ R_{sp} & R_{ss} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_p^i \\ E_s^i \end{bmatrix} \quad (5.26)$$

où le mélange des polarisations  $s$  et  $p$  est représenté par les éléments non diagonaux de la matrice de réflexion de Jones. En utilisant l'équation (5.26), la relation entre les états de polarisation réfléchi  $\chi_r$  et incident  $\chi_i$  s'écrit

$$\chi_r = \frac{(R_{sp}/R_{ss}) + \chi_i}{(R_{pp}/R_{ss}) + (R_{ps}/R_{ss})\chi_i}. \quad (5.27)$$

Par analogie avec un milieu isotrope, on peut définir un rapport complexe  $\varphi = \chi_i/\chi_r$  appelé "pseudoréflectance". Avec cette définition l'équation 5.27 devient

$$\varphi = \frac{(R_{pp}/R_{ss}) + (R_{ps}/R_{ss}) \tan P}{1 + (R_{sp}/R_{ss})(\tan P)^{-1}}, \quad (5.28)$$

où  $\tan P = \chi_i$  étant l'état de polarisation incidente. D'après cette équation, il est évident que le mélange entre les états de polarisation  $p$  et  $s$  devient plus important pour des positions



du polariseur proches de  $P = 0^\circ$  ou  $90^\circ$ . En particulier, pour HgI<sub>2</sub> une forte intensité de la lumière réfléchiée a été obtenue en orientant le polariseur à  $P = 90^\circ$  par rapport au plan d'incidence.

Selon l'équation 5.28, la pseudoréfectance est indépendante de l'azimut du polariseur fixe  $P$  lorsqu'aucun mélange entre les états de polarisation  $p$  et  $s$  n'a lieu ( $R_{sp}=R_{ps}=0$  et  $\varphi = R_{pp}/R_{ss}$ ). C'est le cas d'un cristal uniaxe dont l'axe optique est dans le plan d'incidence ou perpendiculaire à ce plan.

## 5.2 Détermination des constantes optiques de HgI<sub>2</sub> par la méthode PRPSE généralisée

La particularité de la configuration généralisée de PRPSE, est que cette technique permet d'extraire les constantes optiques d'un milieu anisotrope directement par l'exploitation des coefficients de Fourier sans la connaissance des angles ellipsométriques généralisés. Les mesures ont été effectuées en variant trois paramètres : l'azimut de l'échantillon  $\varphi$ , l'azimut du polariseur  $P$  et l'azimut de l'analyseur  $A$ . L'angle d'incidence est fixée à  $70^\circ$ .

L'origine des azimuts  $\varphi = 0^\circ$  étant connu (position de l'axe optique connue), nous effectuons les mesures jusqu'à  $\varphi = 360^\circ$  avec un pas  $10^\circ$ . Dans le paragraphe (5.2.3), nous verrons que l'ellipsométrie généralisée peut évaluer une position arbitraire de l'axe optique par rapport au plan d'incidence [116].

Sur la figure 5.1 sont représentés les spectres des coefficients de Fourier en fonction de l'angle azimutal  $\varphi$  à l'énergie  $E=1,67$  eV. Les variations des coefficients de Fourier en fonction de l'angle azimutal sont périodiques. Si la normale à la surface et l'axe de rotation ne sont pas confondus, la périodicité de  $180^\circ$  n'est plus reproductible pour  $\alpha'_{2c}$ ,  $\alpha'_{2s}$ ,  $\alpha'_{4c}$  et  $\alpha'_{4s}$ . Ceci constitue un autre moyen de vérification de l'absence d'une précession de la normale à l'échantillon.

Nous avons représenté sur les figures (5.2) et (5.3) les spectres des coefficients de Fourier mesurés à l'angle d'incidence  $\theta = 70^\circ$  en fonction de l'énergie, pour les valeurs de l'angle azimutal  $\varphi = 30^\circ, 39^\circ, 60^\circ, 72^\circ$  et  $120^\circ$ . Ces spectres montrent que les réponses ellipsométriques du substrat HgI<sub>2</sub> sont très sensibles à l'orientation de l'échantillon. L'anisotropie optique de HgI<sub>2</sub> induit une forte variation des coefficients de Fourier.

Après la détermination des coefficients de Fourier expérimentaux, les indices de réfraction complexes ordinaire et extraordinaire de HgI<sub>2</sub> à la température ambiante sont directe-

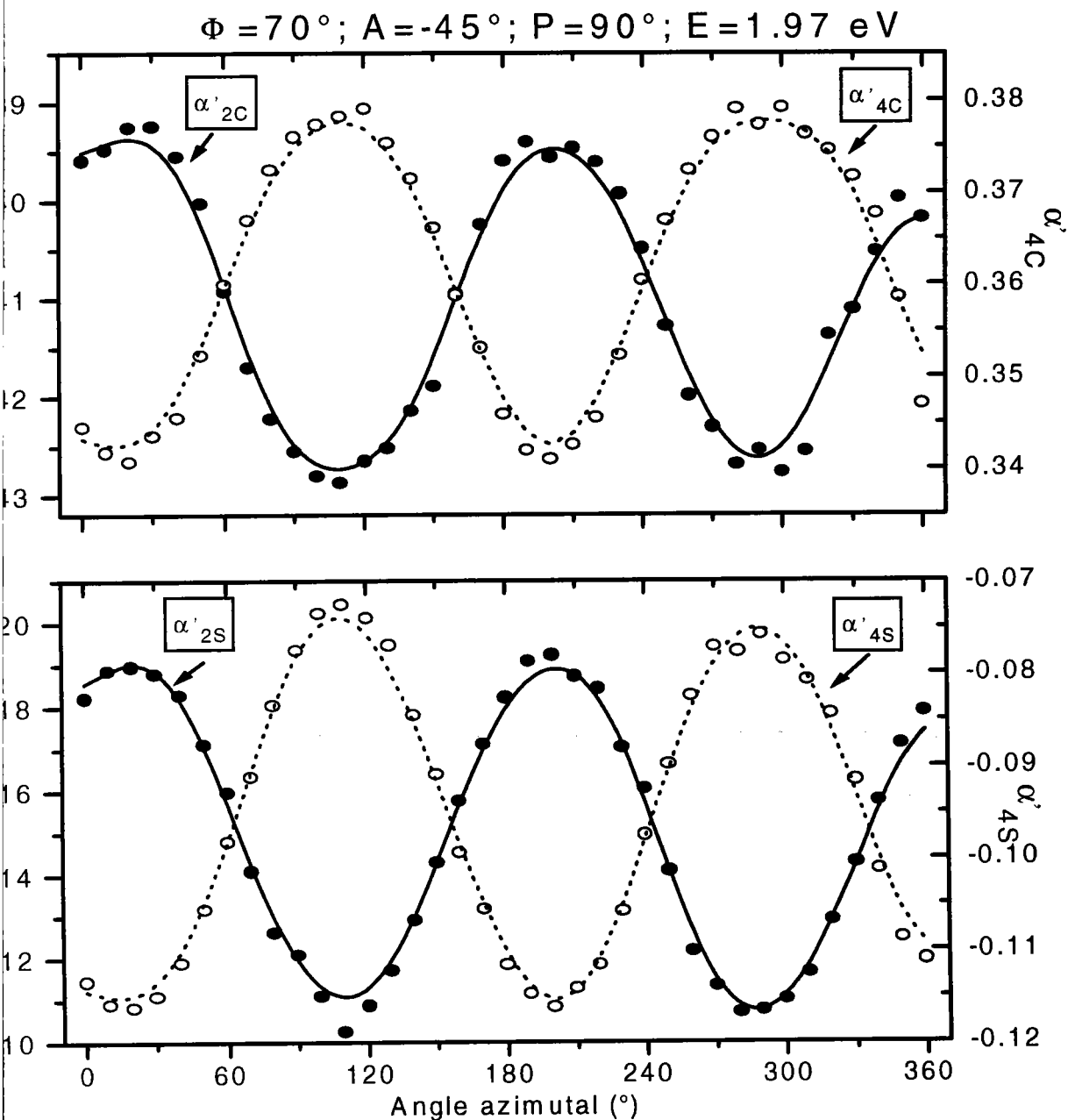
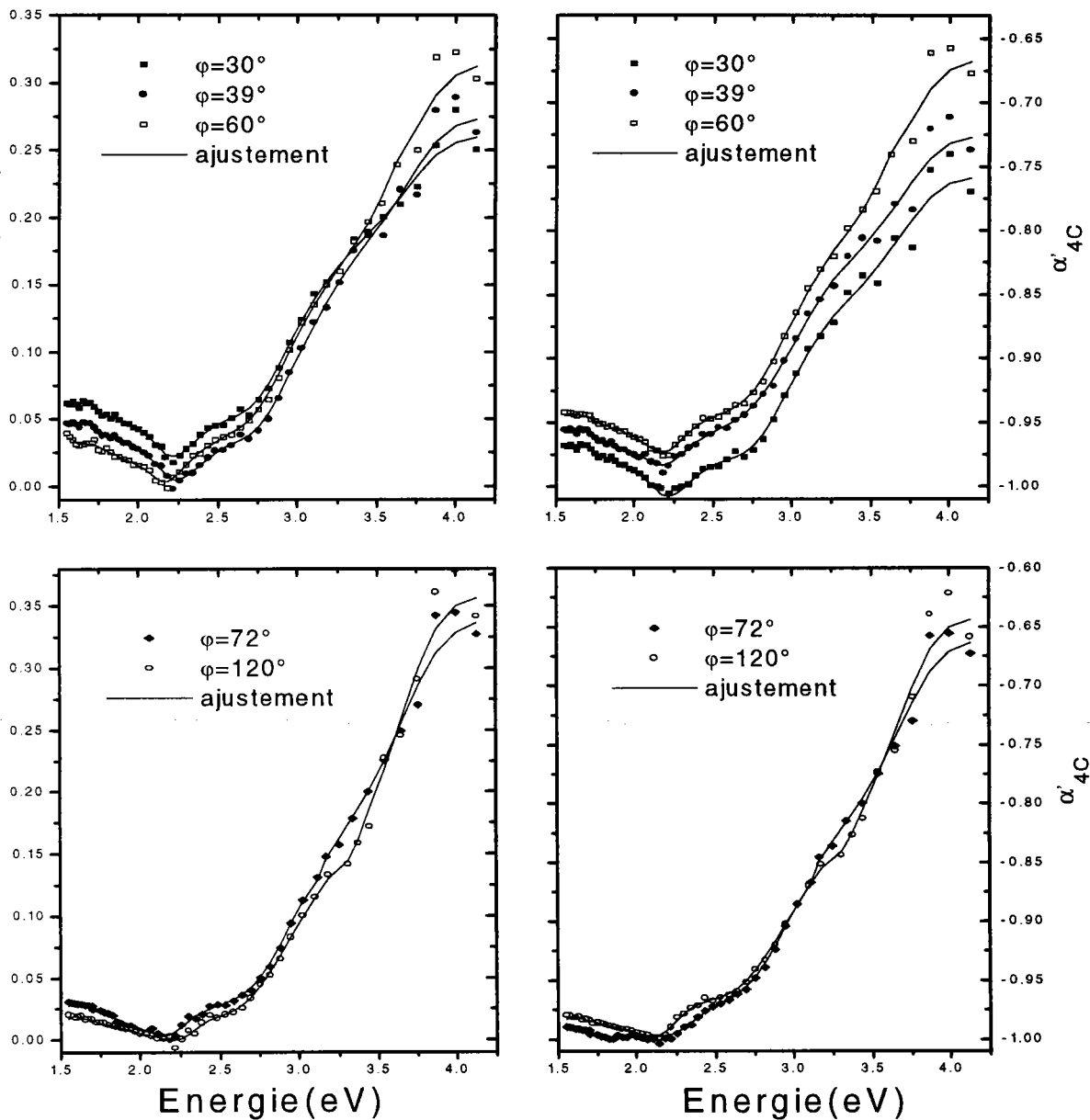


Figure 5.1: Coefficients  $\alpha'_{2C}$ ,  $\alpha'_{2S}$ ,  $\alpha'_{4S}$  et  $\alpha'_{4C}$  mesurés sur la surface de  $\text{HgI}_2$  en fonction de l'azimut  $\varphi$  à l'énergie  $E=1,97 \text{ eV}$ .

$\Phi = 70^\circ; A = 45^\circ; P = 0^\circ$



**Figure 5.2:** Coefficients de Fourier  $\alpha'_{2c}$  et  $\alpha'_{4c}$  mesurés sur  $HgI_2$  dont l'axe optique est parallèle à la surface et incliné par rapport au plan d'incidence d'un angle azimutal  $\varphi$ .

$\Phi = 70^\circ$ ;  $A = 45^\circ$ ;  $P = 0^\circ$

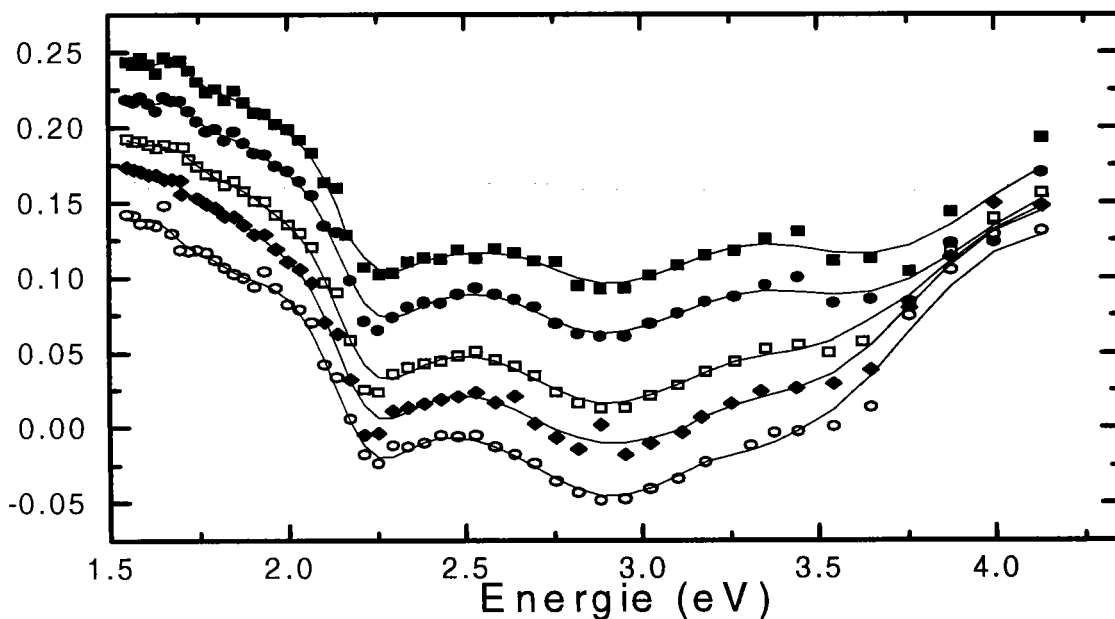
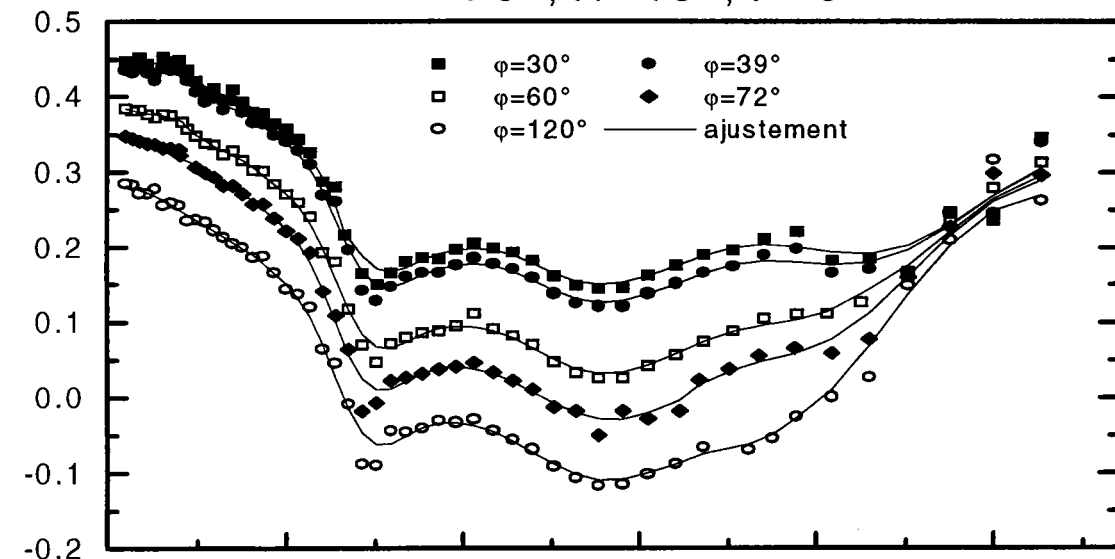


Figure 5.3: Coefficients de Fourier  $\alpha'_{2s}$  et  $\alpha'_{4s}$  mesurés sur  $HgI_2$  dont l'axe optique est parallèle à la surface et incliné par rapport au plan d'incidence d'un angle azimutal  $\varphi$ .

ment obtenus par inversion point par point en minimisant la quantité  $\chi^2$  :

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^2 \sum_{j=1}^2 \sum_{l=1}^2 \left[ \frac{\alpha'_{2c}{}^e - \alpha'_{2c}{}^c(\varphi_i, P_j, A_l)}{\delta\alpha'_{2c}{}^e} \right]^2 + \left[ \frac{\alpha'_{2s}{}^e - \alpha'_{2s}{}^c(\varphi_i, P_j, A_l)}{\delta\alpha'_{2s}{}^e} \right]^2 + \left[ \frac{\alpha'_{4c}{}^e - \alpha'_{4c}{}^c(\varphi_i, P_j, A_l)}{\delta\alpha'_{4c}{}^e} \right]^2 + \left[ \frac{\alpha'_{4s}{}^e - \alpha'_{4s}{}^c(\varphi_i, P_j, A_l)}{\delta\alpha'_{4s}{}^e} \right]^2, \quad (5.29)$$

où  $(\alpha'_{2c}{}^e, \dots, \alpha'_{4s}{}^e)$  sont les coefficients de Fourier mesurés,  $(\alpha'_{2c}{}^c, \dots, \alpha'_{4s}{}^c)$  sont les coefficients calculés à partir des équations (5.12-5.15), et  $(\delta\alpha'_{2c}{}^e, \dots, \delta\alpha'_{4s}{}^e)$  sont les incertitudes expérimentales sur les coefficients de Fourier. L'origine principale de ces incertitudes peut provenir d'un mauvais ajustement de l'échantillon. La figure (5.4) montre les indices complexes de  $HgI_2$  à la température ambiante obtenus par la méthode PRPSE généralisée.

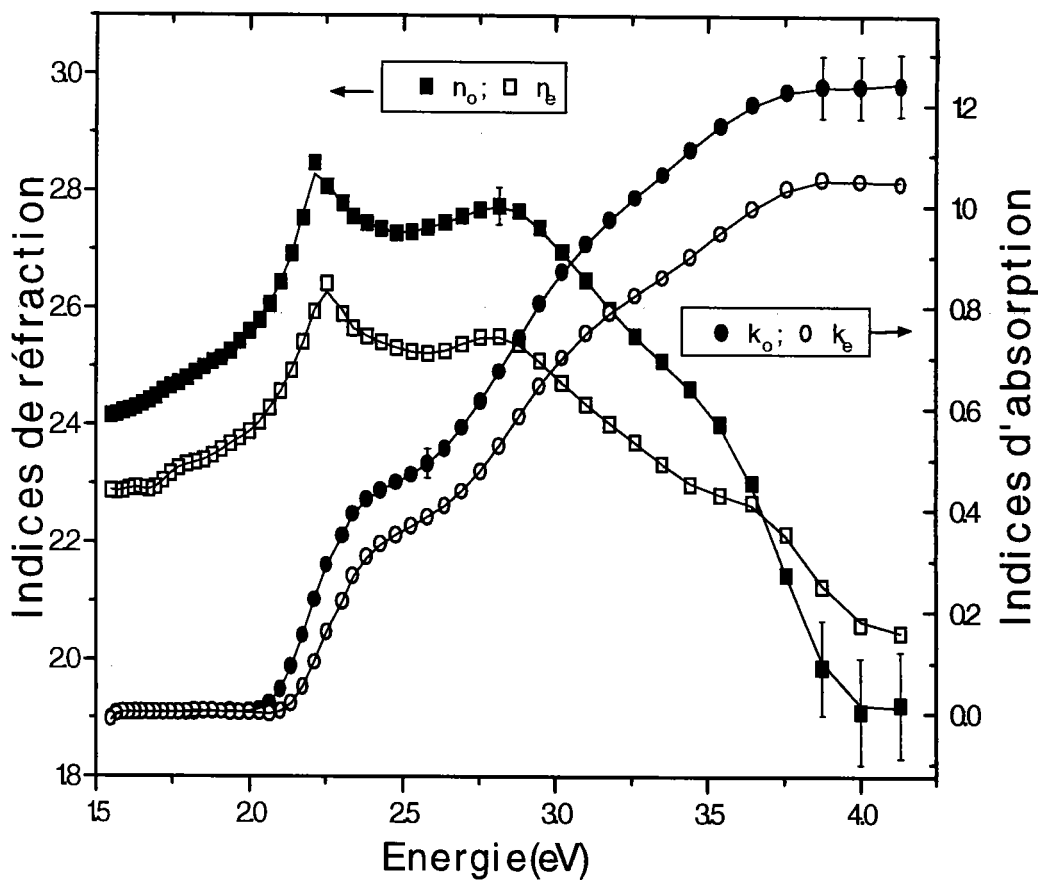


Figure 5.4: Constantes optiques de  $HgI_2$  à la température ambiante.

### 5.2.1 Vérification de la reproductibilité des résultats

L'adéquation d'une méthode ou la validité d'un modèle ne pourront être vérifiées qu'en multipliant les mesures ( $\lambda$ ,  $\theta$  et  $\varphi$ ). Dans notre cas, nous testons systématiquement la reproductibilité des résultats en exploitant les spectres des coefficients de Fourier obtenus pour divers angles azimutaux  $\varphi$ . Le processus numérique est répété pour plusieurs couples d'angles azimutaux ( $\varphi_1, \varphi_2$ ) incorporés dans la fonction écart (équation 5.29). Les indices doivent être indépendants de l'orientation de l'échantillon.

Nous avons donc réalisé les inversions des coefficients de Fourier pour différents couples de valeurs d'angles azimutaux ( $\varphi_1, \varphi_2$ ).

Il faut noter que l'inversion des données expérimentales en PRPSE généralisée est peu sensible aux valeurs initiales, contrairement à la méthode d'inversion en PRPSE conventionnelle.

Les valeurs des indices obtenues à l'énergie  $E=2,95$  eV sont présentées dans le tableau (5.1) ci-dessous.

| $(\varphi_1, \varphi_2)$ | $n_o$            | $n_e$            | $k_o$            | $k_e$            |
|--------------------------|------------------|------------------|------------------|------------------|
| $(39^\circ, 72^\circ)$   | $2.721 \pm 0.03$ | $2.527 \pm 0.04$ | $0.687 \pm 0.02$ | $0.678 \pm 0.03$ |
| $(39^\circ, 120^\circ)$  | $2.726 \pm 0.02$ | $2.539 \pm 0.02$ | $0.775 \pm 0.01$ | $0.619 \pm 0.02$ |
| $(60^\circ, 72^\circ)$   | $2.726 \pm 0.02$ | $2.512 \pm 0.03$ | $0.774 \pm 0.01$ | $0.651 \pm 0.02$ |
| $(120^\circ, 72^\circ)$  | $2.742 \pm 0.02$ | $2.504 \pm 0.05$ | $0.735 \pm 0.01$ | $0.654 \pm 0.03$ |
| $(39^\circ, 60^\circ)$   | $2.726 \pm 0.03$ | $2.539 \pm 0.02$ | $0.775 \pm 0.01$ | $0.619 \pm 0.03$ |
| $(0^\circ, 90^\circ)$    | $2.382 \pm 0.29$ | $2.056 \pm 0.11$ | $0.218 \pm 0.04$ | $0.398 \pm 0.04$ |

**Tableau 5.1:** Comparaison entre les valeurs des indices obtenus pour quelques couples d'angles azimutaux ( $\varphi_1, \varphi_2$ ) à l'énergie  $E=2,95$  eV.

La comparaison peut être présentée à chaque longueur d'onde. C'est un moyen efficace pour vérifier l'exactitude des résultats numériques. Nous avons constaté un très bon accord entre les valeurs et une bonne reproductibilité des résultats obtenus en combinant les spectres de  $\varphi_1 = 39^\circ, 60^\circ$  et  $\varphi_2 = 72^\circ, 120^\circ$ . Ceci confirme la validité de notre méthode d'acquisition qui consiste à faire tourner l'échantillon pour un seul angle d'incidence. Cependant, les indices obtenus à  $\varphi_1 = 0^\circ$  et  $\varphi_2 = 90^\circ$  sont différents des autres résultats. La technique PRPSE généralisée n'est plus valable pour les orientations particulières de l'axe optique par rapport au plan d'incidence ( $\varphi = 0^\circ$  ou  $90^\circ$ ).

La même difficulté a déjà été notée par Hauge [117], pour des mesures avec un compensateur

tournant généralisé.

Pour obtenir des résultats corrects dans ces deux cas avec l'ellipsomètre PRPSE, il est indispensable de faire varier l'angle d'incidence comme nous l'avons expliqué dans le chapitre 4.

### 5.2.2 Comparaison avec les indices obtenus par l'ellipsométrie conventionnelle

Les indices présentés sur la figure 5.4 sont sensiblement identiques avec ceux obtenus par la méthode conventionnelle. Dans le tableau 5.2 sont résumés quelques valeurs des indices de réfraction dans le domaine transparent de  $\text{HgI}_2$  (au dessous de 2,2 eV) obtenus par les deux méthodes.

| E(ev) | $n_o$ (PRPSE géné.) | $n_o$ (PRPSE conv.) | $n_e$ (PRPSE géné.) | $n_e$ (PRPSE conv.) |
|-------|---------------------|---------------------|---------------------|---------------------|
| 2.1   | 2.658               | 2.655               | 2.466               | 2.465               |
| 2.0   | 2.566               | 2.568               | 2.401               | 2.389               |
| 1.9   | 2.520               | 2.519               | 2.363               | 2.361               |
| 1.8   | 2.490               | 2.479               | 2.343               | 2.328               |
| 1.6   | 2.427               | 2.426               | 2.292               | 2.291               |

**Tableau 5.2:** Comparaison entre les valeurs des indices de réfraction de  $\text{HgI}_2$  obtenues par la technique PRPSE généralisée et celles déterminées par PRPSE conventionnelle.

Il est à noter que le même échantillon a été utilisé pour les mesures ellipsométriques conventionnelle et généralisée.

### 5.2.3 Détermination de l'orientation de l'échantillon

Supposons à présent que l'orientation de l'axe optique par rapport au plan d'incidence est inconnue.

La détermination de la première position azimutal  $\varphi_0$  de l'axe optique par rapport au plan d'incidence est suffisante pour déduire les autres angles azimutaux grâce à la relation  $\varphi = \varphi_0 + \Delta\varphi$  (où  $\Delta\varphi$  est le pas de l'angle de rotation).

La première valeur  $\varphi_0$  de l'angle azimutal est déterminée par acquisition des coefficients de Fourier pour au moins deux azimuts du polariseur et de l'analyseur.

À partir d'une série de mesures aux différentes azimuts du polariseur et de l'analyseur, nous avons déterminé les valeurs de  $\varphi_0$  pour de multiples orientations supposées inconnues

## 5. Caractérisation de $HgI_2$ par ellipsométrie généralisée

de l'axe optique par rapport au plan d'incidence. Les résultats sont représentés sur la figure (5.5) pour 51 longueurs d'onde comprises entre 0,3 et 0,8  $\mu\text{m}$ .

Les spectres ellipsométriques utilisés durant le calcul numérique sont obtenus pour les azimuts du polariseur ( $P_1 = 0^\circ$ ;  $P_2 = 90^\circ$ ) et de l'analyseur ( $A_1 = 45^\circ$ ;  $A_2 = 30^\circ$ ). D'après la figure (5.5), il est clair que l'orientation de l'échantillon est indépendante de la longueur d'onde. Les angles azimutaux sont obtenus avec une précision de l'ordre de  $0,6^\circ$ .

Il en résulte que l'ellipsométrie peut déterminer l'orientation d'un cristal en combinant les données acquises par rotation de l'échantillon autour de sa normale.

À ce stade de l'étude, nous pouvons conclure que l'ellipsométrie généralisée est une technique qui permet de déterminer l'anisotropie optique d'un échantillon et son orientation. Par contre, l'ellipsométrie conventionnelle trouve son utilité lorsque on peut orienter le matériau dans une configuration particulière où les éléments non diagonaux sont nuls ou petits devant les éléments diagonaux de la matrice de réflexion de Jones.

La méthode PRPSE généralisée mène plus directement et donc plus rapidement aux paramètres de l'anisotropie de l'échantillon par des mesures des coefficients de Fourier à un seul angle d'incidence. L'ellipsométrie conventionnelle est plus précise (validité de la technique double-zone), cependant son utilisation pour la caractérisation des milieux anisotropes exigent la connaissance précise de la position de l'axe optique et le choix des angles d'incidence optimums.

Sur la figure (5.6) est représentée l'organigramme décrivant les différentes procédures pour étudier un échantillon par ellipsométrie conventionnelle ou généralisée selon la nature diagonale ou non diagonale de la matrice de réflexion de Jones  $R_s$ .



angle azimutal

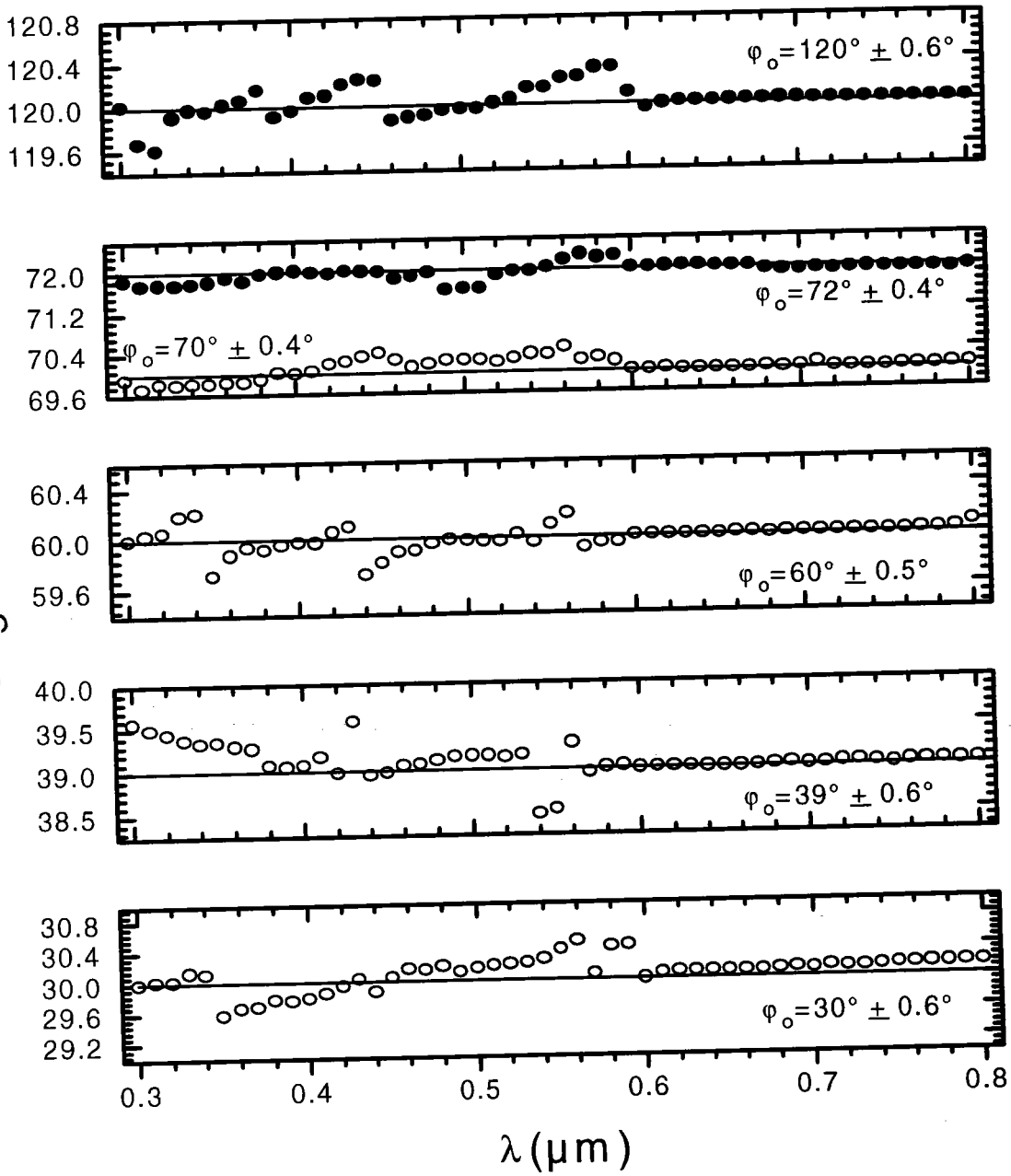


Figure 5.5: Exemples de la détermination de l'angle azimutal : orientation de l'axe optique par rapport au plan d'incidence.

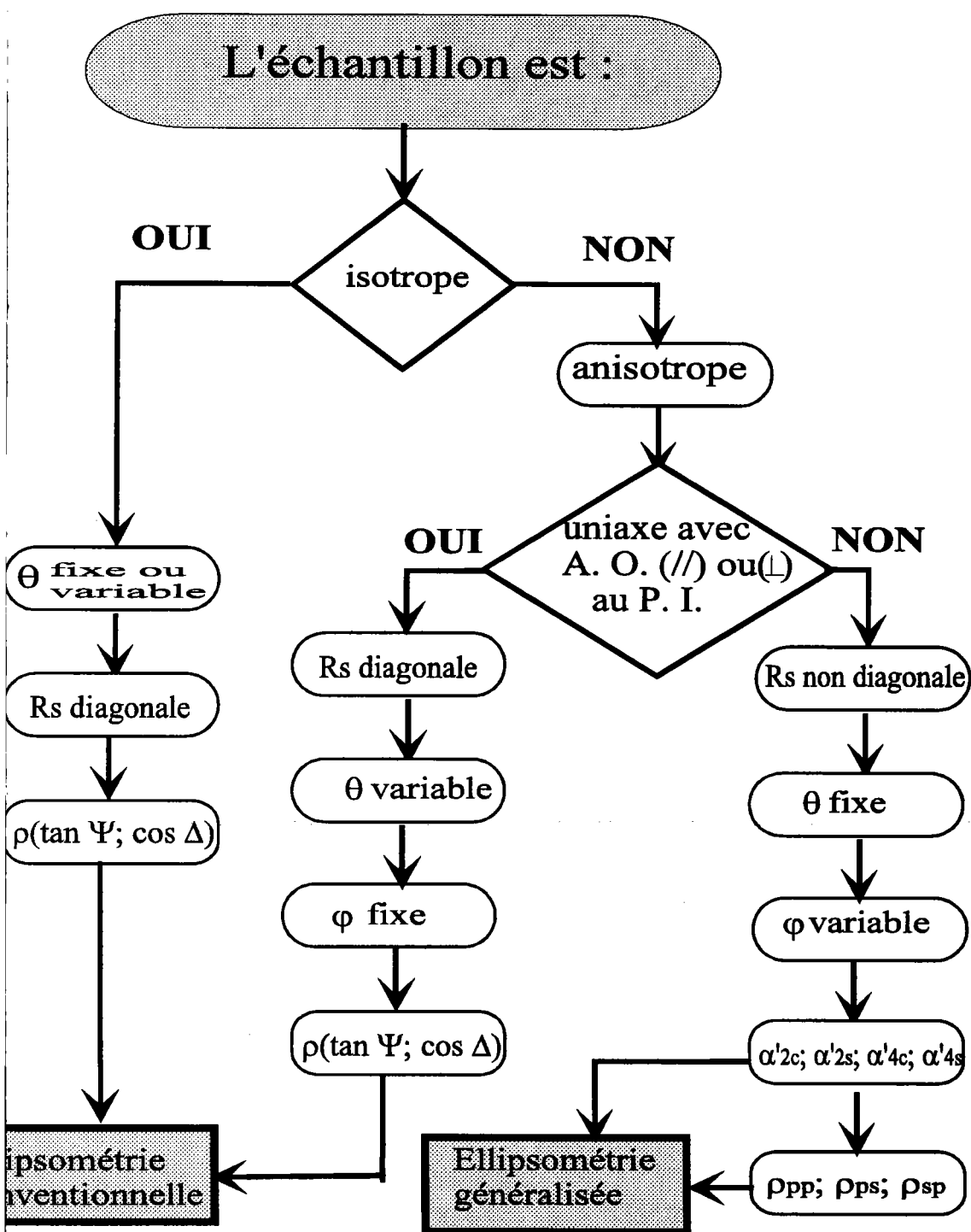


Figure 5.6: Organigramme des possibilités d'études d'un échantillon par ellipsométrie conventionnelle ou par ellipsométrie généralisée. A. O., P. I.,  $\varphi$  et  $\theta$  représentent respectivement l'axe optique, le plan d'incidence, l'angle azimutal et l'angle d'incidence.

## 5.3 Détermination des angles ellipsométriques généralisés

Nous avons démontré que les constantes optiques sont obtenues directement par l'analyse de Fourier sans qu'il soit nécessaire de mesurer les angles ellipsométriques généralisés. Cependant, ces paramètres généralisés ont un intérêt particulier parce qu'ils sont associés uniquement à l'échantillon. Ils peuvent être utilisés pour modéliser la surface d'un échantillon indépendamment du système ellipsométrique.

Théoriquement, pour un substrat uniaxe avec l'axe optique parallèle à sa surface, les éléments non diagonaux de la matrice de réflexion et les rapports ellipsométriques généralisés satisfont aux relations suivantes

$$R_{ps} = -R_{sp} \quad \text{et} \quad \rho_{ps} = -\rho_{sp}. \quad (5.30)$$

On peut donc déterminer uniquement quatre angles ellipsométriques généralisés  $\tan \Psi_{pp}$ ,  $\tan \Psi_{ps}$ ,  $\cos \Delta_{pp}$  et  $\cos \Delta_{ps}$  au lieu de six paramètres. Néanmoins, la relation (5.30) est valable uniquement pour une surface idéale sans contamination. Dans le but de déterminer simultanément tous les paramètres ellipsométriques, la relation (5.30) n'a pas été prise en compte dans notre modèle théorique.

Nous avons donc déterminé les six angles ellipsométriques. Pour obtenir ces paramètres, nous avons changé à la fois l'azimut de l'analyseur et celui du polariseur. En principe seulement trois azimuts de l'analyseur  $A$  et deux du polariseur  $P$  sont nécessaires pour déterminer les angles ellipsométriques généralisés. Les solutions sont obtenues en minimisant la fonction

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^3 \sum_{j=1}^2 \left[ \left( \frac{\alpha'_{2c} - \alpha'_{2c}(A_i, P_j)}{\delta \alpha'_{2c}} \right)^2 + \left( \frac{\alpha'_{2s} - \alpha'_{2s}(A_i, P_j)}{\delta \alpha'_{2s}} \right)^2 + \right. \\ \left. \left( \frac{\alpha'_{4c} - \alpha'_{4c}(A_i, P_j)}{\delta \alpha'_{4c}} \right)^2 + \left( \frac{\alpha'_{4s} - \alpha'_{4s}(A_i, P_j)}{\delta \alpha'_{4s}} \right)^2 \right], \quad (5.31)$$

Pour ce calcul numérique, nous avons utilisé les coefficients de Fourier mesurés et calculés pour ( $A_1 = 45^\circ$ ;  $A_2 = -45^\circ$ ;  $A_3 = 30^\circ$ ) et ( $P_1 = 0^\circ$ ;  $P_2 = 90^\circ$ ). Sur les figures (5.7) et (5.8) sont représentées les spectres ellipsométriques généralisés obtenus par inversion point par point. Ces valeurs peuvent être comparées avec les spectres calculés en utilisant les

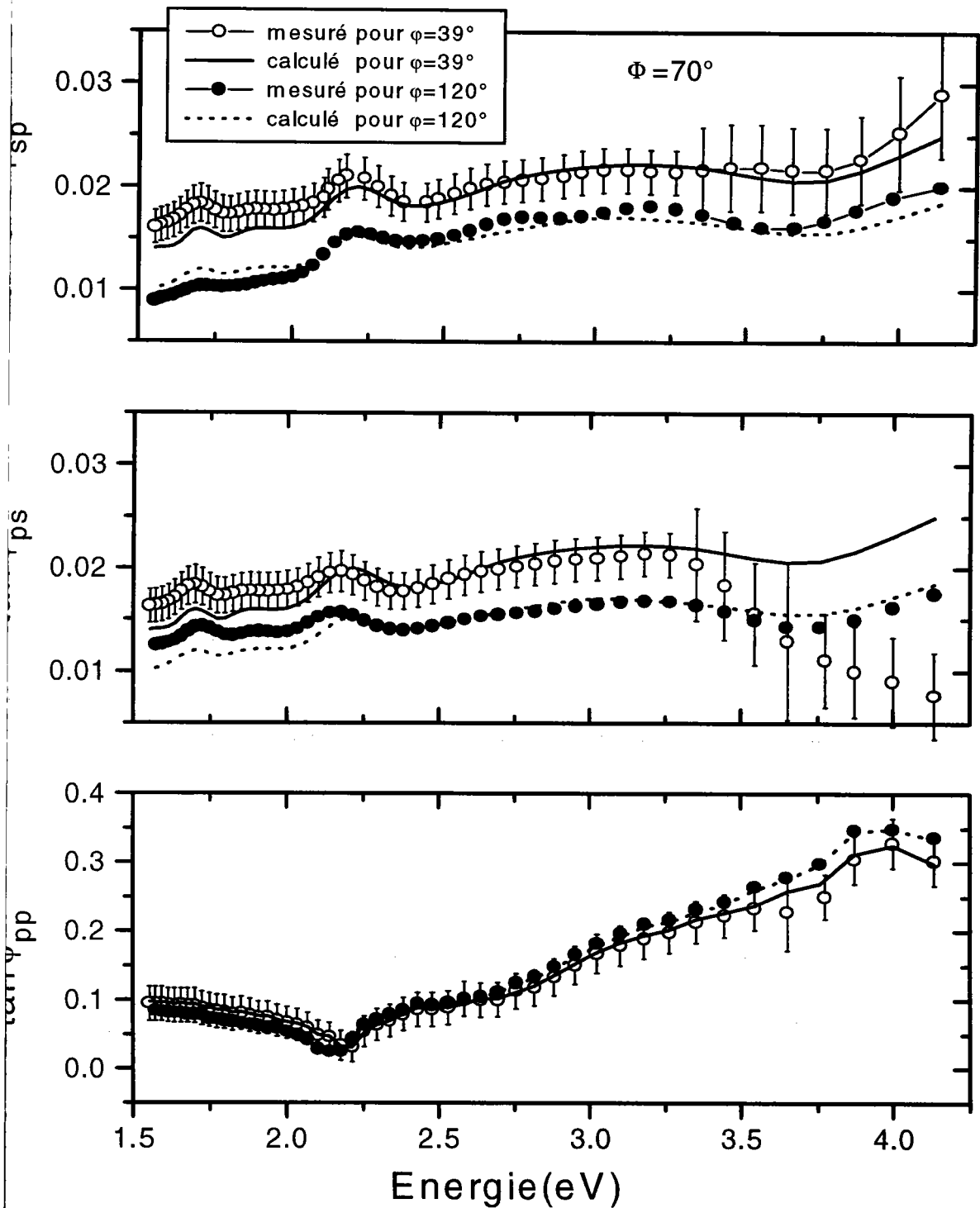


Figure 5.7: Données expérimentales et calculées pour  $\tan \Psi_{pp}$ ,  $\tan \Psi_{ps}$  et  $\tan \Psi_{sp}$  en fonction de l'énergie pour les azimuts  $\varphi = 39^\circ$  et  $120^\circ$ . l'angle d'incidence est  $70^\circ$ . Un excellent accord entre les données théoriques et expérimentales est obtenu pour  $\tan \Psi_{pp}$ .

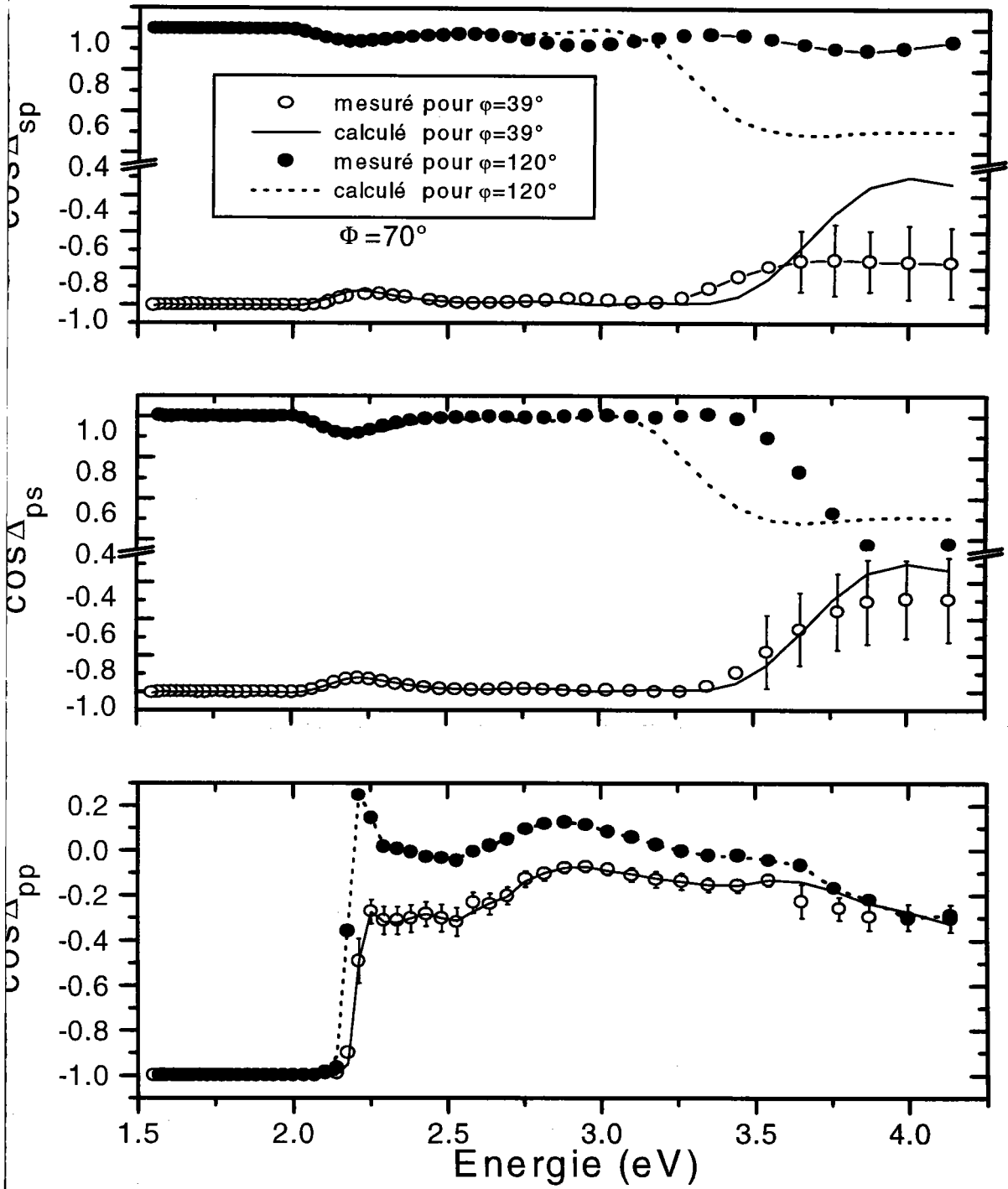


Figure 5.8: Données expérimentales et calculées pour  $\cos \Delta_{pp}$ ,  $\cos \Delta_{ps}$  et  $\cos \Delta_{sp}$  en fonction de l'énergie.

valeurs des constantes optiques déjà obtenues. Les courbes en traits pleins et en pointillés indiquent ces valeurs théoriques respectivement pour  $\varphi_1 = 39^\circ$  et  $\varphi_2 = 120^\circ$ . Les angles ellipsométriques théoriques sont calculés à partir des équations (B. 29), (B. 33) et (B. 37).

Les données expérimentales  $\tan \Psi_{pp}$  et  $\cos \Delta_{pp}$  sont en bon accord avec les valeurs théoriques dans tout le domaine spectral. Pour les paramètres non diagonaux, l'accord est réalisé surtout en dessous de 3,5 eV. Les paramètres  $\cos \Delta_{ps}$  et  $\cos \Delta_{sp}$  sont voisines de 1 pour  $\varphi = 39^\circ$  et -1 pour  $\varphi = 120^\circ$ , et les phases correspondantes  $\Delta_{ps}$  et  $\Delta_{sp}$  sont indéterminer par l'ellipsomètre PRPSE. La déviation des points expérimentaux au dessus de 3,5 eV est sûrement due à un flux trop faible. Dans ce domaine spectral, les incertitudes sur les paramètres ellipsométriques sont élevées.

En général, les angles ellipsométriques généralisés ne sont pas déterminés avec une précision identique pour tous les angles azimutaux. Les incertitudes sur ces paramètres proviennent des erreurs systématiques et aléatoires commises sur les coefficients de Fourier mesurés en fonction de l'angle azimutal de l'échantillon. En raison du polariseur supplémentaire introduit dans le montage, l'ellipsomètre PRPSE n'est pas très affecté par les erreurs provenant des sources de bruit de l'ellipsomètre (électronique, source de lumière, détecteur...), mais les incertitudes augmentent pour les mesures sur des substrats moins réfléchissants.

Elles peuvent être réduites en essayant d'intensifier l'intensité du faisceau réfléchi par l'échantillon (par l'utilisation d'une source plus lumineuse, angle d'incidence plus élevé...) ou en augmentant le temps d'intégration.

Il faut préciser que la procédure double-zone qui permet de compenser au premier ordre les erreurs systématiques n'est plus efficace lorsque les éléments non diagonaux de la matrice de l'échantillon sont différents de zéro en particulier pour la configuration PRPSE généralisée.

Il conviendra alors de chercher une autre technique pour réduire ces erreurs.

## 5.4 Conclusion du cinquième chapitre

La méthode généralisée du montage PRPSE permet de déterminer les constantes optiques, l'orientation de l'échantillon et les angles ellipsométriques généralisés par l'exploitation directe des mesures des coefficients de Fourier.

Nous avons démontré que PRPSE permet de caractériser les échantillons anisotropes possédant une matrice de réflexion de Jones non diagonale. Nous avons exploiter les spectres des coefficients Fourier obtenus par rotation de l'échantillon autour de sa normal. Les mesures ont été effectuées à un seul angle d'incidence,  $70^\circ$ . Cette procédure fournit suffisamment d'information pour déterminer les valeurs des angles ellipsométriques généralisés et les constantes optiques ordinaire et extraordinaire d'un substrat uniaxe.

La méthode a été appliqué à l'étude des propriétés optiques de  $\text{HgI}_2$ . Dans le tableau au dessous, sont résumés les constantes optiques de  $\text{HgI}_2$  et les coefficients d'absorption ordinaire  $\alpha_o$  et extraordinaire  $\alpha_e$ ,

$$\text{où} \quad \alpha_o = 4\pi k_o/\lambda \quad \text{et} \quad \alpha_e = 4\pi k_e/\lambda.$$

| $\lambda(\mu\text{m})$ | $\mathbf{E}(\text{eV})$ | $\mathbf{n}_o$ | $\mathbf{n}_e$ | $\mathbf{k}_o$ | $\mathbf{k}_e$ | $\alpha_o(10^3)\text{cm}^{-1}$ | $\alpha_e(10^3)\text{cm}^{-1}$ |
|------------------------|-------------------------|----------------|----------------|----------------|----------------|--------------------------------|--------------------------------|
| 0.30                   | 4.13                    | 1.954          | 2.055          | 1.207          | 0.964          | 505.58                         | 403.88                         |
| 0.31                   | 4                       | 1.858          | 2.039          | 1.213          | 1.139          | 491.83                         | 461.91                         |
| 0.32                   | 3.87                    | 1.964          | 2.091          | 1.299          | 1.096          | 510.23                         | 430.63                         |
| 0.33                   | 3.76                    | 2.15           | 2.258          | 1.217          | 1.029          | 463.5                          | 391.84                         |
| 0.34                   | 3.65                    | 2.329          | 2.267          | 1.215          | 1.008          | 449.24                         | 372.88                         |
| 0.35                   | 3.54                    | 2.395          | 2.331          | 1.187          | 0.925          | 426.32                         | 332.28                         |
| 0.36                   | 3.44                    | 2.476          | 2.3            | 1.092          | 0.894          | 381.24                         | 312.2                          |
| 0.37                   | 3.35                    | 2.502          | 2.327          | 1.051          | 0.866          | 357.18                         | 294.35                         |
| 0.38                   | 3.26                    | 2.554          | 2.377          | 1              | 0.814          | 332.37                         | 269.21                         |
| 0.39                   | 3.18                    | 2.595          | 2.401          | 0.989          | 0.787          | 318.67                         | 253.58                         |
| 0.40                   | 3.1                     | 2.65           | 2.431          | 0.935          | 0.762          | 293.8                          | 239.45                         |
| 0.41                   | 3.02                    | 2.695          | 2.471          | 0.879          | 0.708          | 269.59                         | 217.15                         |
| 0.42                   | 2.95                    | 2.74           | 2.512          | 0.811          | 0.656          | 242.82                         | 196.3                          |

5. Caractérisation de  $HgI_2$  par ellipsométrie généralisée

| $\lambda(\mu m)$ | $E(eV)$ | $n_o$ | $n_e$ | $k_o$ | $k_e$ | $\alpha_o(10^3)cm^{-1}$ | $\alpha_e(10^3)cm^{-1}$ |
|------------------|---------|-------|-------|-------|-------|-------------------------|-------------------------|
| 0.43             | 2.88    | 2.77  | 2.539 | 0.729 | 0.58  | 213.19                  | 169.73                  |
| 0.44             | 2.82    | 2.777 | 2.554 | 0.66  | 0.51  | 188.72                  | 145.79                  |
| 0.45             | 2.75    | 2.769 | 2.552 | 0.616 | 0.461 | 172.21                  | 128.98                  |
| 0.46             | 2.69    | 2.754 | 2.538 | 0.551 | 0.414 | 150.74                  | 113.31                  |
| 0.47             | 2.64    | 2.746 | 2.522 | 0.505 | 0.423 | 135.05                  | 113.17                  |
| 0.48             | 2.58    | 2.738 | 2.524 | 0.481 | 0.385 | 126.16                  | 100.79                  |
| 0.49             | 2.53    | 2.724 | 2.523 | 0.464 | 0.349 | 119.2                   | 89.6                    |
| 0.50             | 2.48    | 2.731 | 2.531 | 0.446 | 0.35  | 112.16                  | 88.19                   |
| 0.51             | 2.43    | 2.727 | 2.542 | 0.461 | 0.353 | 113.64                  | 87.2                    |
| 0.52             | 2.38    | 2.747 | 2.549 | 0.418 | 0.314 | 101.01                  | 75.88                   |
| 0.53             | 2.34    | 2.758 | 2.563 | 0.398 | 0.266 | 94.43                   | 63.23                   |
| 0.54             | 2.3     | 2.764 | 2.58  | 0.359 | 0.246 | 83.75                   | 57.29                   |
| 0.55             | 2.25    | 2.812 | 2.606 | 0.327 | 0.203 | 74.73                   | 46.38                   |
| 0.56             | 2.21    | 2.835 | 2.603 | 0.227 | 0.088 | 51.11                   | 19.83                   |
| 0.57             | 2.17    | 2.743 | 2.543 | 0.133 | 0.014 | 29.36                   | 3.19                    |
| 0.58             | 2.14    | 2.678 | 2.476 | 0.055 | 0     | 12.04                   | 0                       |
| 0.59             | 2.1     | 2.658 | 2.466 | 0.044 | 0     | 9.39                    | 0                       |
| 0.60             | 2.07    | 2.594 | 2.421 | 0     | 0     | 0                       | 0                       |
| 0.61             | 2.03    | 2.574 | 2.402 | 0     | 0     | 0                       | 0                       |
| 0.62             | 2       | 2.566 | 2.389 | 0     | 0     | 0                       | 0                       |
| 0.63             | 1.97    | 2.542 | 2.379 | 0     | 0     | 0                       | 0                       |
| 0.64             | 1.94    | 2.518 | 2.363 | 0     | 0     | 0                       | 0                       |
| 0.65             | 1.91    | 2.519 | 2.362 | 0     | 0     | 0                       | 0                       |
| 0.66             | 1.88    | 2.505 | 2.348 | 0     | 0     | 0                       | 0                       |
| 0.67             | 1.85    | 2.498 | 2.334 | 0     | 0     | 0                       | 0                       |
| 0.68             | 1.82    | 2.49  | 2.343 | 0     | 0     | 0                       | 0                       |
| 0.69             | 1.79    | 2.479 | 2.328 | 0     | 0     | 0                       | 0                       |
| 0.70             | 1.77    | 2.469 | 2.33  | 0     | 0     | 0                       | 0                       |
| 0.71             | 1.75    | 2.464 | 2.318 | 0     | 0     | 0                       | 0                       |
| 0.72             | 1.72    | 2.465 | 2.305 | 0     | 0     | 0                       | 0                       |
| 0.73             | 1.7     | 2.443 | 2.29  | 0     | 0     | 0                       | 0                       |
| 0.74             | 1.67    | 2.439 | 2.29  | 0     | 0     | 0                       | 0                       |
| 0.75             | 1.65    | 2.442 | 2.287 | 0     | 0     | 0                       | 0                       |
| 0.76             | 1.63    | 2.421 | 2.299 | 0     | 0     | 0                       | 0                       |
| 0.77             | 1.61    | 2.427 | 2.291 | 0     | 0     | 0                       | 0                       |
| 0.78             | 1.59    | 2.426 | 2.284 | 0     | 0     | 0                       | 0                       |
| 0.79             | 1.54    | 2.416 | 2.289 | 0     | 0     | 0                       | 0                       |
| 0.80             | 1.53    | 2.413 | 2.285 | 0     | 0     | 0                       | 0                       |



## Conclusion générale

Le travail présenté dans ce mémoire a porté principalement sur deux points :

- l'adaptation de l'ellipsomètre à polariseur tournant à trois éléments (PRPSE) à la mesure d'échantillons anisotropes,
- l'étude des propriétés optiques anisotropes de l'iodure mercurique ( $\text{HgI}_2$ ).

Le premier point a consisté à élaborer les logiciels et les procédures expérimentales permettant de remonter aux caractéristiques optiques de la surface d'un échantillon anisotrope. Les mesures ellipsométriques ont été effectuées par deux techniques.

L'ellipsométrie conventionnelle qui se réfère à l'étude d'échantillons isotropes ou anisotropes possédant une matrice de Jones de réflexion diagonale. Dans ce cas, nous avons montré qu'il était possible de déterminer les indices complexes ordinaire et extraordinaire d'un substrat anisotrope uniaxe par l'acquisition des spectres ellipsométriques en fonction de l'angle d'incidence. En général, deux angles d'incidence et de deux orientations particulières de l'axe optique par rapport au plan d'incidence (axe optique orienté parallèlement ou perpendiculairement au plan d'incidence) suffisent pour extraire les quatre indices réels ( $n_o$ ,  $n_e$ ,  $k_o$  et  $k_e$ ) caractérisant un substrat absorbant uniaxe. Cependant, il est indispensable de disposer d'échantillons dont l'axe optique est parallèle à la surface. Il faut également choisir avec soin les angles d'incidence, sinon l'inversion des équations ellipsométriques peut conduire à un système mal conditionné.

La deuxième technique concerne l'ellipsométrie généralisée. Elle permet de caractériser totalement la matrice de Jones comportant des éléments non diagonaux différents de zéro.

Un développement théorique a été présenté permettant à la technique PRPSE de mesurer les éléments non diagonaux normalisés de la matrice de Jones de réflexion. Ceci nous permet d'être les premiers à étendre l'appareil PRPSE à l'ellipsométrie généralisée.

Avec la méthode PRPSE généralisée, les constantes optiques d'un système (milieu ambiant/substrat uniaxe) sont obtenues directement par l'analyse de Fourier sans l'intermédiaire des angles ellipsométriques. Cependant, il faut préciser que l'acquisition des coefficients de Fourier s'effectue pour plusieurs positions du polariseur fixe  $P$  et de l'analyseur  $A$ , et pour différentes valeurs d'angle azimutal  $\varphi$  de l'orientation de l'échantillon par rapport au plan d'incidence ( $\varphi \neq 0^\circ$  et  $90^\circ$ ). L'avantage de cette méthode c'est qu'elle permet de déterminer les constantes optiques et les angles ellipsométriques généralisés en utilisant uniquement un seul angle d'incidence. En plus, elle fournit la première position arbitraire de l'axe optique par rapport au plan d'incidence.

La solution générale permettant de remonter aux propriétés optiques des corps anisotropes est de le faire tourner autour de la normal à la surface. C'est pourquoi un porte-échantillon rotatif a été mis en place. Les outils logiciels nécessaires pour tester les différentes procédures de calcul des paramètres ellipsométriques (les coefficients de Fourier et les angles ellipsométriques conventionnels et généralisés) ont été réalisés, ainsi des programmes de simulation numérique et de minimisation ont été écrits pour interpréter et exploiter quantitativement les spectres ellipsométriques obtenus sur des échantillons anisotropes.

Le deuxième point a été consacré à l'application de l'ellipsométrie conventionnelle et généralisée développée dans ce mémoire aux mesures d'indices de réfraction complexes ordinaire ( $n_o - ik_o$ ) et extraordinaire ( $n_e - ik_e$ ) de l'iodure mercurique  $\text{HgI}_2$ . Les cristaux  $\text{HgI}_2$  doivent être orientés parallèlement à l'axe optique. En effet, l'exploitation des spectres obtenus sur des cristaux normaux à l'axe optique a conduit à des solutions erronées. Dans un premier temps nous avons étudié des cristaux de  $\text{HgI}_2$  n'ayant jamais été traités avec une solution d'iodure de potassium (KI), les indices de réfraction et d'absorption ont été obtenus pour 51 longueurs d'onde dans le domaine spectral  $0,3 - 0,8 \mu\text{m}$ .

Le problème expérimental rencontré lors des mesures ellipsométriques de  $\text{HgI}_2$  est que ce matériau réagit avec l'air même à la température ambiante. Un modèle physique a été développé pour étudier l'évolution de l'état de la surface des échantillons en fonction du

emps. Cette étude a permis de repérer une couche d'une épaisseur de l'ordre de 9 nm formée après 30 heures d'exposition à l'air et constituée d'un mélange de  $\text{HgI}_2$  et d'air.

D'autres mesures ellipsométriques ont été réalisées sur des cristaux de  $\text{HgI}_2$  traités avec une solution diluée d'iodure de potassium (KI). Les résultats obtenus confirment la formation d'une couche transparente dont l'épaisseur dépend de la concentration du KI et du temps de traitement. Ce film a été identifié dans la littérature comme étant le complexe  $[\text{KHgI}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}]$ , son indice de réfraction déterminé par ellipsométrie est très proche de celui de l'eau. Ce résultat n'est pas étrange puisque le complexe est hygroscopique et peut retenir une grande quantité d'eau. Le recours à ce traitement chimique ne permet pas l'accès direct aux constantes optiques du substrat  $\text{HgI}_2$ .

Les performances actuelles de notre montage et les procédures numériques et expérimentales mises en place permettent de caractériser totalement l'anisotropie optique des structures suivantes :

- substrat uniaxe,
- système monocouche ambient/film isotrope/substrat uniaxe,
- système monocouche ambient/film uniaxe/substrat isotrope,
- système monocouche ambient/film uniaxe/substrat uniaxe.

Il serait intéressant d'étendre l'appareil PRPSE à la caractérisation des systèmes multicouches anisotropes.

L'inconvénient d'un ellipsomètre à polariseur tournant est qu'il fournit seulement une mesure de  $\cos \Delta$  qui ne permet pas de remonter au signe de déphasage ni à l'information sur l'échantillon lorsque  $\Delta$  est faible. Il est alors d'un très grand intérêt d'implanter une lame retardatrice dans le montage (PRPSE).

Dans l'immédiat, nous envisageons de poursuivre nos études par la mise au point d'un algorithme de calcul des indices complexes des milieux biaxes et d'examiner la possibilité de la technique PRPSE dans la caractérisation de l'anisotropie optique de ces milieux.



## Annexe A

# Mesure des coefficients $h_i$ : méthode de Hadamard

Cette méthode permet de déterminer les coefficients de la série de Fourier à l'aide des contenus des huit compteurs (S1 à S8). Le signal étant intégré par seizième de période, chacune des sommes peut être calculée à partir de l'expression du signal :

$$\begin{aligned}
 S1 &= \int_0^{\pi/8} I(P_t) dP_t & S5 &= \int_{\pi/2}^{5\pi/8} I(P_t) dP_t \\
 S2 &= \int_{\pi/8}^{\pi/4} I(P_t) dP_t & S6 &= \int_{5\pi/8}^{3\pi/4} I(P_t) dP_t \\
 S3 &= \int_{\pi/4}^{3\pi/8} I(P_t) dP_t & S7 &= \int_{3\pi/4}^{7\pi/8} I(P_t) dP_t \\
 S4 &= \int_{3\pi/8}^{\pi/2} I(P_t) dP_t & S8 &= \int_{7\pi/8}^{\pi} I(P_t) dP_t
 \end{aligned}$$

Après calcul, on obtient :

$$S1 = \frac{\pi}{8}h_0 + \frac{\sqrt{2}}{4}h_{2c} + \frac{2 - \sqrt{2}}{4}h_{2s} + \frac{1}{4}h_{4c} + \frac{1}{4}h_{4s} \quad (\text{A.1})$$

$$S2 = \frac{\pi}{8}h_0 + \frac{2 - \sqrt{2}}{4}h_{2c} + \frac{\sqrt{2}}{4}h_{2s} - \frac{1}{4}h_{4c} + \frac{1}{4}h_{4s} \quad (\text{A.2})$$

$$S3 = \frac{\pi}{8}h_0 + \frac{\sqrt{2} - 2}{4}h_{2c} + \frac{\sqrt{2}}{4}h_{2s} - \frac{1}{4}h_{4c} - \frac{1}{4}h_{4s} \quad (\text{A.3})$$

$$S4 = \frac{\pi}{8}h_0 - \frac{\sqrt{2}}{4}h_{2c} + \frac{2 - \sqrt{2}}{4}h_{2s} + \frac{1}{4}h_{4c} - \frac{1}{4}h_{4s} \quad (\text{A.4})$$

$$S5 = \frac{\pi}{8}h_0 - \frac{\sqrt{2}}{4}h_{2c} + \frac{\sqrt{2} - 2}{4}h_{2s} + \frac{1}{4}h_{4c} + \frac{1}{4}h_{4s} \quad (\text{A.5})$$

$$S6 = \frac{\pi}{8}h_0 + \frac{\sqrt{2} - 2}{4}h_{2c} - \frac{\sqrt{2}}{4}h_{2s} - \frac{1}{4}h_{4c} + \frac{1}{4}h_{4s} \quad (\text{A.6})$$

A. Mesure des coefficients  $h_i$  : méthode de Hadamard

$$S7 = \frac{\pi}{8}h_0 + \frac{2 - \sqrt{2}}{4}h_{2c} - \frac{\sqrt{2}}{4}h_{2s} - \frac{1}{4}h_{4c} - \frac{1}{4}h_{4s} \quad (\text{A.7})$$

$$S8 = \frac{\pi}{8}h_0 + \frac{\sqrt{2}}{4}h_{2c} + \frac{\sqrt{2} - 2}{4}h_{2s} + \frac{1}{4}h_{4c} - \frac{1}{4}h_{4s} \quad (\text{A.8})$$

$$(\text{A.9})$$

Par combinaison des différents  $S_i$ , on détermine les coefficients  $h_0$ ,  $h_{2c}$ ,  $h_{2s}$ ,  $h_{4c}$  et  $h_{4s}$ .

On a donc :

$$h_0 = \frac{S1 + S2 + S3 + S4 + S5 + S6 + S7 + S8}{\pi} \quad (\text{A.10})$$

$$h_{2c} = \frac{S1 + S2 - S3 - S4 - S5 - S6 + S7 + S8}{2} \quad (\text{A.11})$$

$$h_{2s} = \frac{S1 + S2 + S3 + S4 - S5 - S6 - S7 - S8}{2} \quad (\text{A.12})$$

$$h_{4c} = \frac{S1 - S2 - S3 + S4 + S5 - S6 - S7 + S8}{2} \quad (\text{A.13})$$

$$h_{4s} = \frac{S1 + S2 - S3 - S4 + S5 + S6 - S7 - S8}{2} \quad (\text{A.14})$$

## Annexe B

# Relations entre les angles ellipsométriques et les constantes optiques

### B.1 Axe optique perpendiculaire à l'interface

Si le milieu ambiant est l'air, son indice de réfraction  $n$  égal à 1. D'après les équations (2.63) et (2.64), on obtient :

$$\rho = \tan \Psi e^{i\Delta} = \frac{R_{pp}}{R_{ss}} = \frac{(N_o N_e \cos \theta - n \sqrt{N_e^2 - n^2 \sin^2 \theta})(n \cos \theta + \sqrt{N_o^2 - n^2 \sin^2 \theta})}{(N_o N_e \cos \theta + n \sqrt{N_e^2 - n^2 \sin^2 \theta})(n \cos \theta - \sqrt{N_o^2 - n^2 \sin^2 \theta})}. \quad (\text{B.1})$$

Sachant que  $N_o = n_o - ik_o$  et  $N_e = n_e - ik_e$ , on peut écrire :

$$\beta_l = \arctan\left(\frac{2n_l k_l}{n_l^2 - k_l^2 - \sin^2 \theta}\right), \quad (l = o, e) \quad (\text{B.2})$$

$$\alpha_l^2 = (n_l^2 - k_l^2 - \sin^2 \theta)^2 + 4n_l^2 k_l^2, \quad (l = o, e) \quad (\text{B.3})$$

Posons :

$$\begin{aligned} a_1 &= \{(n_o n_e - k_o k_e) \cos \theta - n \sqrt{\alpha_e} \cos \frac{\beta_e}{2}\} (n \cos \theta + \sqrt{\alpha_o} \cos \frac{\beta_o}{2}) \\ &\quad - \{(n_e k_o + n_o k_e) \cos \theta - n \sqrt{\alpha_e} \sin \frac{\beta_e}{2}\} \sqrt{\alpha_o} \sin \frac{\beta_o}{2} \\ a_2 &= \{(n_o n_e - k_o k_e) \cos \theta - n \sqrt{\alpha_e} \cos \frac{\beta_e}{2}\} \sqrt{\alpha_o} \sin \frac{\beta_o}{2} \\ &\quad + \{(n_e k_o + n_o k_e) \cos \theta - n \sqrt{\alpha_e} \sin \frac{\beta_e}{2}\} (n \cos \theta + \sqrt{\alpha_o} \cos \frac{\beta_o}{2}) \\ a_3 &= \{(n_o n_e - k_o k_e) \cos \theta + n \sqrt{\alpha_e} \cos \frac{\beta_e}{2}\} (n \cos \theta - \sqrt{\alpha_o} \cos \frac{\beta_o}{2}) \\ &\quad + \{(n_e k_o + n_o k_e) \cos \theta + n \sqrt{\alpha_e} \sin \frac{\beta_e}{2}\} \sqrt{\alpha_o} \sin \frac{\beta_o}{2} \end{aligned}$$

$$a_4 = \left\{ (n_o n_e - k_o k_e) \cos \theta + n \sqrt{\alpha_e} \cos \frac{\beta_e}{2} \right\} \sqrt{\alpha_o} \sin \frac{\beta_o}{2} - \left\{ (n_e k_o + n_o k_e) \cos \theta + n \sqrt{\alpha_e} \sin \frac{\beta_e}{2} \right\} (n \cos \theta - \sqrt{\alpha_o} \cos \frac{\beta_o}{2}).$$

Le rapport  $\frac{R_{pp}}{R_{ss}}$  se sépare en un terme réel et un autre complexe:

$$\rho = \tan \Psi e^{i\Delta} = \frac{R_{pp}}{R_{ss}} = \frac{a_1 a_3 - a_2 a_4}{a_3^2 + a_4^2} - i \frac{a_2 a_3 + a_1 a_4}{a_3^2 + a_4^2}.$$

On déduit donc:

$$\left\{ \begin{array}{l} \tan \psi = \sqrt{\frac{a_1^2 + a_2^2}{a_3^2 + a_4^2}} \\ \cos \Delta = \frac{a_1 a_3 - a_2 a_4}{\sqrt{(a_1^2 + a_2^2)(a_3^2 + a_4^2)}} \end{array} \right. \quad (\text{B.4})$$

L'angle  $\Delta$  est défini à  $\Pi$  près.

## B.2 Axe optique parallèle à la surface

Dans ce cas, nous avons trois coefficients à développer :

$$\rho_{pp} = \frac{R_{pp}}{R_{ss}} = \tan \Psi_{pp} e^{i\Delta_{pp}} \quad (\text{B.5})$$

$$\rho_{ps} = \frac{R_{ps}}{R_{ss}} = \tan \Psi_{ps} e^{i\Delta_{ps}} \quad (\text{B.6})$$

$$\rho_{sp} = \frac{R_{sp}}{R_{ss}} = \tan \Psi_{sp} e^{i\Delta_{sp}}. \quad (\text{B.7})$$

Les équations (2.85)-(2.88) nous permet d'écrire ces coefficients comme suit :

$$\rho_{pp} = \frac{AD_1 - C_1B}{A_1D - B_1C} \quad \rho_{sp} = \frac{C_1D - D_1C}{A_1D - B_1C} \quad \rho_{ps} = \frac{AB_1 - A_1B}{A_1D - B_1C}.$$

Dans le but de calculer les différents angles ellipsométriques  $\tan \Psi$  et  $\cos \Delta$ , nous décomposons chacun de ces rapports complexes  $\rho_{pp}$ ,  $\rho_{ps}$  et  $\rho_{sp}$  en une partie réelle et une partie imaginaire. Pour cela, nous commençons à écrire les paramètres  $A, A_1, \dots, D_1$  sous des formes simplifiées.

Pour résoudre ce problème nous définissons les paramètres  $\alpha_l, \beta_l$  ( $l=o, e$ ) et  $J_i$  ( $i=1-4$ ) tels que :

$$N_l^2 - n^2 \sin^2 \theta = \alpha_l \exp(-i\beta_l), \quad (l = o, e) \quad (\text{B.8})$$

$$Y^2 = (J_1 - J_3) - i(J_2 - J_4) = \alpha_1 \exp(-i\beta_1), \quad (\text{B.9})$$



où

$$\beta_l = \arctan\left(\frac{2n_l k_l}{n_l^2 - k_l^2 - \sin^2 \theta}\right), (l = o, e) \quad (\text{B.10})$$

$$\alpha_l^2 = (n_l^2 - k_l^2 - \sin^2 \theta)^2 + 4n_l^2 k_l^2, (l = o, e) \quad (\text{B.11})$$

$$J_1 = (n_o^2 - k_o^2)(n_e^2 - k_e^2) - 4n_o n_e k_o k_e, \quad (\text{B.12})$$

$$J_2 = 2[n_o k_o (n_e^2 - k_e^2) + n_e k_e (n_o^2 - k_o^2)], \quad (\text{B.13})$$

$$J_3 = n^2 \sin^2 \theta \{ \sin^2 \phi (n_o^2 - k_o^2) + \cos^2 \phi (n_e^2 - k_e^2) \}, \quad (\text{B.14})$$

$$J_4 = n^2 \sin^2 \theta (2n_o k_o \sin^2 \phi + 2n_e k_e \cos^2 \phi). \quad (\text{B.15})$$

En tenant compte de ces données, nous obtenons :

$$\begin{aligned} A &= [\cos \phi (n_o^2 - k_o^2 - n^2 \sin^2 \theta) + n \cos \theta \cos \phi \sqrt{\alpha_o} \sin \beta_o / 2 \\ &\quad - i(2n_o k_o \cos \phi + n \cos \theta \cos \phi \sqrt{\alpha_o} \cos \beta_o / 2)] \gamma_o \frac{\omega^2}{c^2} \\ &= a_1 - ia_2 \end{aligned} \quad (\text{B.16})$$

$$\begin{aligned} A_1 &= [-\cos \phi (n_o^2 - k_o^2 - n^2 \sin^2 \theta) + n \cos \theta \cos \phi \sqrt{\alpha_o} \sin \beta_o / 2 \\ &\quad - i(-2n_o k_o \cos \phi + n \cos \theta \cos \phi \sqrt{\alpha_o} \cos \beta_o / 2)] \gamma_o \frac{\omega^2}{c^2} \\ &= a_1^* - ia_2^* \end{aligned} \quad (\text{B.17})$$

$$\begin{aligned} B &= [n \cos \theta \sin \phi (n_o^2 - k_o^2) + \sqrt{\alpha_1} \sin \phi (n_o \cos \beta_1 / 2 - k_o \sin \beta_1 / 2) \\ &\quad - i(2n_o k_o n \cos \theta \sin \phi + \sqrt{\alpha_1} \sin \phi \{k_o \cos \beta_1 / 2 + n_o \sin \beta_1 / 2\})] \gamma_e \frac{\omega^2}{c^2} \\ &= b_1 - ib_2 \end{aligned} \quad (\text{B.18})$$

$$\begin{aligned} B_1 &= [n \cos \theta \sin \phi (n_o^2 - k_o^2) - \sqrt{\alpha_1} \sin \phi (n_o \cos \beta_1 / 2 - k_o \sin \beta_1 / 2) \\ &\quad - i(2n_o k_o n \cos \theta \sin \phi - \sqrt{\alpha_1} \sin \phi \{k_o \cos \beta_1 / 2 + n_o \sin \beta_1 / 2\})] \gamma_e \frac{\omega^2}{c^2} \\ &= b_1^* - ib_2^* \end{aligned} \quad (\text{B.19})$$

$$\begin{aligned} C &= -[n \sin \phi \sqrt{\alpha_o} \cos \beta_o / 2 + \sin \phi \cos \theta (n_o^2 - k_o^2) \\ &\quad - i(2n_o k_o \cos \theta \sin \phi + n \sin \phi \sqrt{\alpha_o} \sin \beta_o / 2)] \gamma_o \frac{\omega^2}{c^2} \\ &= -(c_1 - ic_2) \end{aligned} \quad (\text{B.20})$$

$$\begin{aligned} C_1 &= -[n \sin \phi \sqrt{\alpha_o} \cos \beta_o / 2 - \sin \phi \cos \theta (n_o^2 - k_o^2) \\ &\quad - i(-2n_o k_o \cos \theta \sin \phi + n \sin \phi \sqrt{\alpha_o} \sin \beta_o / 2)] \gamma_o \frac{\omega^2}{c^2} \\ &= -(c_1^* - ic_2^*) \end{aligned} \quad (\text{B.21})$$

B. Relations entre les angles ellipsométriques et les constantes optiques

$$\begin{aligned}
 D &= [n \cos \phi (n_o^2 - k_o^2 - n^2 \sin^2 \theta) + \cos \phi \cos \theta (n_o \sqrt{\alpha_1} \cos \beta_1/2 - k_o \sqrt{\alpha_1} \sin \beta_1/2) \\
 &\quad - i(2n_o k_o n \cos \phi + \cos \phi \cos \theta \{k_o \sqrt{\alpha_1} \cos \beta_1/2 + n_o \sqrt{\alpha_1} \sin \beta_1/2\})] \gamma_e \frac{\omega^2}{c^2} \\
 &= d_1 - id_2
 \end{aligned} \tag{B.22}$$

$$\begin{aligned}
 D_1 &= [n \cos \phi (n_o^2 - k_o^2 - n^2 \sin^2 \theta) - \cos \phi \cos \theta (n_o \sqrt{\alpha_1} \cos \beta_1/2 - k_o \sqrt{\alpha_1} \sin \beta_1/2) \\
 &\quad - i(2n_o k_o n \cos \phi - \cos \phi \cos \theta \{k_o \sqrt{\alpha_1} \cos \beta_1/2 + n_o \sqrt{\alpha_1} \sin \beta_1/2\})] \gamma_e \frac{\omega^2}{c^2} \\
 &= d_1^* - id_2^*.
 \end{aligned} \tag{B.23}$$

• Calcul de  $\tan \Psi_{pp}$  et  $\cos \Delta_{pp}$  :

$$\begin{aligned}
 \rho_{pp} &= \frac{R_{pp}}{R_{ss}} = \tan \Psi_{pp} e^{i\Delta_{pp}} = \frac{(a_1 - ia_2)(d_1^* - id_2^*) + (c_1^* - ic_2^*)(b_1 - ib_2)}{(a_1^* - ia_2^*)(d_1 - id_2) + (c_1 - ic_2)(b_1^* - ib_2^*)} \\
 &= \frac{e_1 e_3 + e_2 e_4}{e_3^2 + e_4^2} - i \frac{(e_2 e_3 - e_1 e_4)}{e_3^2 + e_4^2},
 \end{aligned} \tag{B.24}$$

avec :

$$e_1 = a_1 d_1^* - a_2 d_2^* + c_1^* b_1 - c_2^* b_2 \tag{B.25}$$

$$e_2 = a_2 d_1^* + a_1 d_2^* + c_1^* b_2 + c_2^* b_1 \tag{B.26}$$

$$e_3 = a_1^* d_1 - a_2^* d_2 + c_1 b_1^* - c_2 b_2^* \tag{B.27}$$

$$e_4 = a_2^* d_1 + a_1^* d_2 + c_1 b_2^* + c_2 b_1^*. \tag{B.28}$$

On déduit donc :

$$\left\{ \begin{array}{l} \tan \psi_{pp} = \sqrt{\frac{e_1^2 + e_2^2}{e_3^2 + e_4^2}} \\ \cos \Delta_{pp} = \frac{e_1 e_3 + e_2 e_4}{\sqrt{(e_1^2 + e_2^2)(e_3^2 + e_4^2)}} \end{array} \right. \tag{B.29}$$

• Calcul de  $\tan \Psi_{sp}$  et  $\cos \Delta_{sp}$  :

$$\begin{aligned}
 \rho_{sp} &= \frac{R_{sp}}{R_{ss}} = \tan \Psi_{sp} e^{i\Delta_{sp}} = \frac{(c_1 - ic_2)(d_1^* - id_2^*) - (c_1^* - ic_2^*)(d_1 - id_2)}{(a_1^* - ia_2^*)(d_1 - id_2) + (c_1 - ic_2)(b_1^* - ib_2^*)} \\
 &= \frac{f_1 e_3 + f_2 e_4}{e_3^2 + e_4^2} - i \frac{(f_2 e_3 - f_1 e_4)}{e_3^2 + e_4^2},
 \end{aligned} \tag{B.30}$$

avec :

$$f_1 = c_1 d_1^* - c_2 d_2^* - c_1^* d_1 + c_2^* d_2 \tag{B.31}$$

$$f_2 = c_2 d_1^* + c_1 d_2^* - c_1^* d_2 - c_2^* d_1. \tag{B.32}$$

D'où :

$$\begin{cases} \tan \psi_{sp} = \sqrt{\frac{f_1^2 + f_2^2}{e_3^2 + e_4^2}} \\ \cos \Delta_{sp} = \frac{f_1 e_3 + f_2 e_4}{\sqrt{(f_1^2 + f_2^2)(e_3^2 + e_4^2)}} \end{cases} \quad (\text{B.33})$$

• Calcul de  $\tan \Psi_{ps}$  et  $\cos \Delta_{ps}$  :

$$\begin{aligned} \rho_{ps} &= \frac{R_{ps}}{R_{ss}} = \tan \Psi_{ps} e^{i\Delta_{ps}} = \frac{(a_1 - ia_2)(b_1^* - ib_2^*) - (a_1^* - ia_2^*)(b_1 - ib_2)}{(a_1^* - ia_2^*)(d_1 - id_2) + (c_1 - ic_2)(b_1^* - ib_2^*)} \\ &= \frac{g_1 e_3 + g_2 e_4}{e_3^2 + e_4^2} - i \frac{(g_2 e_3 - g_1 e_4)}{e_3^2 + e_4^2}, \end{aligned} \quad (\text{B.34})$$

avec :

$$g_1 = a_1 b_1^* - a_2 b_2^* - a_1^* b_1 + a_2^* b_2 \quad (\text{B.35})$$

$$g_2 = a_1 b_2^* + a_2 b_1^* - a_1^* b_2 - a_2^* b_1. \quad (\text{B.36})$$

On en déduit :

$$\begin{cases} \tan \psi_{ps} = \sqrt{\frac{g_1^2 + g_2^2}{e_3^2 + e_4^2}} \\ \cos \Delta_{ps} = \frac{g_1 e_3 + g_2 e_4}{\sqrt{(g_1^2 + g_2^2)(e_3^2 + e_4^2)}} \end{cases} \quad (\text{B.37})$$

### B.2.1 Axe optique parallèle à l'interface et au plan d'incidence ( $\phi = 0^\circ$ )

Dans ce cas la matrice de réflexion de Jones est diagonale, nous pouvons utiliser les notations de l'ellipsométrie conventionnelle.

D'après les équations (2.99) et (2.102) on a :

$$\tan \Psi e^{i\Delta} = \frac{R_{pp}}{R_{ss}} = \frac{(n\sqrt{N_o^2 - n^2 \sin^2 \theta} - N_o N_e \cos \theta)(\sqrt{N_o^2 - n^2 \sin^2 \theta} + n \cos \theta)}{(n\sqrt{N_o^2 - n^2 \sin^2 \theta} + N_o N_e \cos \theta)(-\sqrt{N_o^2 - n^2 \sin^2 \theta} + n \cos \theta)}, \quad (\text{B.38})$$

Si on pose :

$$b_1 = \left( -n\sqrt{\alpha_o} \cos \frac{\beta_o}{2} + (n_o n_e - k_o k_e) \cos \theta \right) (n \cos \theta + \sqrt{\alpha_o} \cos \frac{\beta_o}{2})$$

$$- \left( (n_o k_e + n_e k_o) \cos \theta - n \sqrt{\alpha_o} \sin \frac{\beta_o}{2} \right) \sqrt{\alpha_o} \sin \frac{\beta_o}{2} \quad (\text{B.39})$$

$$b_2 = \left( (n_o k_e + n_e k_o) \cos \theta - n \sqrt{\alpha_o} \sin \frac{\beta_o}{2} \right) (n \cos \theta + \sqrt{\alpha_o} \cos \frac{\beta_o}{2}) + \left( -n \sqrt{\alpha_o} \cos \frac{\beta_o}{2} + (n_o n_e - k_o k_e) \cos \theta \right) \sqrt{\alpha_o} \sin \frac{\beta_o}{2} \quad (\text{B.40})$$

$$b_3 = \left( n \sqrt{\alpha_o} \cos \frac{\beta_o}{2} + (n_o n_e - k_o k_e) \cos \theta \right) (n \cos \theta - \sqrt{\alpha_o} \cos \frac{\beta_o}{2}) + \left( (n_o k_e + n_e k_o) \cos \theta + n \sqrt{\alpha_o} \sin \frac{\beta_o}{2} \right) \sqrt{\alpha_o} \sin \frac{\beta_o}{2} \quad (\text{B.41})$$

$$b_4 = \left( (n_o k_e + n_e k_o) \cos \theta + n \sqrt{\alpha_o} \sin \frac{\beta_o}{2} \right) (n \cos \theta - \sqrt{\alpha_o} \cos \frac{\beta_o}{2}) - \left( n \sqrt{\alpha_o} \cos \frac{\beta_o}{2} + (n_o n_e - k_o k_e) \cos \theta \right) \sqrt{\alpha_o} \sin \frac{\beta_o}{2} \quad (\text{B.42})$$

on obtient les relations suivantes:

$$\tan \Psi e^{i\Delta} = \frac{R_{pp}}{R_{ss}} = -\frac{b_1 b_3 + b_2 b_4}{b_3^2 + b_4^2} - i \frac{b_1 b_4 - b_2 b_3}{b_3^2 + b_4^2} \quad (\text{B.43})$$

$$\begin{cases} \tan \psi = \sqrt{\frac{b_1^2 + b_2^2}{b_3^2 + b_4^2}} \\ \cos \Delta = \frac{b_1 b_3 + b_2 b_4}{\sqrt{(b_1^2 + b_2^2)(b_3^2 + b_4^2)}} \end{cases} \quad (\text{B.44})$$

### B.2.2 Axe optique parallèle à l'interface et perpendiculaire au plan d'incidence ( $\phi = 90^\circ$ )

De même, la matrice de réflexion de Jones est diagonale.

Les équations (2.104) et (2.107) donnent

$$\tan \Psi e^{i\Delta} = \frac{R_{pp}}{R_{ss}} = \frac{(n \sqrt{N_o^2 - n^2 \sin^2 \theta} - N_o^2 \cos \theta)(\sqrt{N_e^2 - n^2 \sin^2 \theta} + n \cos \theta)}{(n \sqrt{N_o^2 - n^2 \sin^2 \theta} + N_o^2 \cos \theta)(-\sqrt{N_e^2 - n^2 \sin^2 \theta} + n \cos \theta)} \quad (\text{B.45})$$

Si on pose :

$$c_1 = \left( -n \sqrt{\alpha_o} \cos \frac{\beta_o}{2} + (n_o^2 - k_o^2) \cos \theta \right) (n \cos \theta + \sqrt{\alpha_e} \cos \frac{\beta_e}{2}) - \left( 2n_o k_o \cos \theta - n \sqrt{\alpha_o} \sin \frac{\beta_o}{2} \right) \sqrt{\alpha_e} \sin \frac{\beta_e}{2} \quad (\text{B.46})$$

$$c_2 = \left( 2n_o k_o \cos \theta - n \sqrt{\alpha_o} \sin \frac{\beta_o}{2} \right) (n \cos \theta + \sqrt{\alpha_e} \cos \frac{\beta_e}{2}) - \left( n \sqrt{\alpha_o} \cos \frac{\beta_o}{2} - (n_o^2 - k_o^2) \cos \theta \right) \sqrt{\alpha_e} \sin \frac{\beta_e}{2} \quad (\text{B.47})$$

$$c_3 = \left( n \sqrt{\alpha_o} \cos \frac{\beta_o}{2} + (n_o^2 - k_o^2) \cos \theta \right) (n \cos \theta - \sqrt{\alpha_e} \cos \frac{\beta_e}{2}) + \left( 2n_o k_o \cos \theta + n \sqrt{\alpha_o} \sin \frac{\beta_o}{2} \right) \sqrt{\alpha_e} \sin \frac{\beta_e}{2} \quad (\text{B.48})$$

$$c_4 = \left( 2n_o k_o \cos \theta + n \sqrt{\alpha_o} \sin \frac{\beta_o}{2} \right) (n \cos \theta - \sqrt{\alpha_e} \cos \frac{\beta_e}{2}) - \left( n \sqrt{\alpha_o} \cos \frac{\beta_o}{2} + (n_o^2 - k_o^2) \cos \theta \right) \sqrt{\alpha_e} \sin \frac{\beta_e}{2}, \quad (\text{B.49})$$

on obtient les relations suivantes:

$$\tan \Psi e^{i\Delta} = \frac{R_{pp}}{R_{ss}} = -\frac{c_1 c_3 + c_2 c_4}{c_3^2 + c_4^2} - i \frac{c_1 c_4 - c_2 c_3}{c_3^2 + c_4^2} \quad (\text{B.50})$$

$$\begin{cases} \tan \psi = \sqrt{\frac{c_1^2 + c_2^2}{c_3^2 + c_4^2}} \\ \cos \Delta = \frac{c_1 c_3 + c_2 c_4}{\sqrt{(c_1^2 + c_2^2)(c_3^2 + c_4^2)}} \end{cases} \quad (\text{B.51})$$



## Références

- [1] P. Drude, *Annalen der Physik und Chemie* **32**, 594 (1887); **36**, 532 (1889); **39**, 481 (1890).
- [2] D.E. Aspnes, *J. Vac. Sci. Tech* **18**, 289 (1981).
- [3] X. Wang and J. Yao, *Appl. Opt.* **31**, 4505-4508 (1992).
- [4] R.S. Weis and T.K. Gaylord, *Appl. Opt.* **28**, 1926-1930 (1989).
- [5] I. Bozovic, *Phys. Rev. B* **42**, 1969-1984 (1990).
- [6] D.W. Berreman, *J. Opt. Soc. Am.* **62**, 502 (1971).
- [7] P. Yeh, *Surf. Sci.* **96**, 41 (1980).
- [8] M. Schubert, *Phys. Rev. B.* **53**, 4265 (1996).
- [9] A. El Ghemmaz "Contribution à l'étude des propriétés optiques des métaux liquides par ellipsométrie spectroscopique" (Thèse d'Université de Metz, 1996).
- [10] N. Stein "Couplage des techniques ellipsométriques et électrochimiques pour l'étude de la réactivité de métaux. Application à la croissance de films de sulfate de plomb et d'heptanoate de cuivre" (Thèse d'Université de Metz, 1997).
- [11] N. Stein, E. Rocca, R. Kleim, J.M. Lecuire et E. McRae, *Electrochimica Acta* **44**, 445 (1998).
- [12] N. Stein, L. Johann, C. Rapin et J.M. Lecuire, *Electrochimica Acta* **43**, 3227 (1998).
- [13] P. Yeh, "Optical Waves in Layered Media" (Ed. Johan Wiley et Sons, 1988).
- [14] D.V. Chepur et V.A. Petrusevich, *Zhurnal Tekhnicheskoi Fiziki* **25**, 1523 (1955).

- [15] W.R. Willig, *N. I. M.* **96**, 615 (1971).
- [16] P.B. Gilman, P.A. Vaughan, P.A. Van der Meulen *Phot. Sci. Eng.* **3**, 215 (1959).
- [17] M. Sieskind, M. Amann and J.P. Ponpon, *Appl. Phys. A.* **66**, 655 (1998).
- [18] H.E. Merwin, "International Critical Tables", Vol.7 (McGraw-Hill, New York 1930).
- [19] M. Sieskind, "Recherches sur les propriétés optiques et les spectres excitoniques des variétés rouge et orangée de  $HgI_2$ ," (Thèse de l'Université de Strasbourg, Revue d'Optique Théorique et Instrumentale, 1960).
- [20] A. Anedda, F. Raga, E. Grill et M. Guzzi, *Nuovo Cimento* **38B**, 439 (1977).
- [21] H. Yao, B. Johs and R.B. James, *Phys. Rev. B.* **56**, 9414 (1997).
- [22] S.Huard "Polarisation de la lumière" (Masson, 1994).
- [23] P. Jaquinot "Optique électromagnétique des milieux anisotropes" (Hermant, 1965).
- [24] M. Born et E. Wolf "Principles of Optics" (Ed. Pergmon, sixth edition 1980).
- [25] G. Bruhat "Optique", Cours de physique générale, (Masson, Paris, 1992).
- [26] J. Ph. Perez "Optique géométrique et ondulatoire" (Ed. Masson, 1994).
- [27] R. Kleim "Polarisation de la lumière " (cours DESS 1996/1997).
- [28] G. D. Landry et T. A. Maldonado, *J. Opt. Soc. Am. A.* **12**, 2048 (1995).
- [29] P. Lascaux, R. Theodor "Analyse numérique matricielle appliquée à l'art de l'ingénieur," (Masson, Paris, 1986).
- [30] J. Lekner, *J. Phys. Condens. Matter* **3** 6121 (1991).
- [31] R.M.A. Azzam et N.M. Bashara "Ellipsometry et polarized light" (North-Holland, 1986).
- [32] A.B. Winterbottom, *in The Royal Norwegian Sci. Soc. Rept. No. 1*, F. Bruns, Trondheim (1955).
- [33] T.P. Sosnowski, *Opt. Commun.* **3** 408-412(1972).



- [34] P.S. Theocaris, E.E. Gdoutos "Matrix theory of photoelasticity" (Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1979).
- [35] B. Lecourt "Ellipsométrie spectroscopique conventionnelle et généralisée de films moléculaires ultraminesces. Bases théoriques et instrumentales-Application à l'étude de films Langmuir-Boldgett et de films autosupportés." (Thèse d'Université Bordeaux I, Septembre 1998).
- [36] R.M.A. Azzam et N.M. Bashara, *J. Opt. Soc. Am.* **62**, 1521 (1972).
- [37] E. Franke, M. Schubert, H. Neumann, T.E. Tiwald, D.W. Thompson, J.A. Woollam, J. Hahn et F. Richter, *J. Appl. Phys.* **82**, 2906 (1997).
- [38] L.A.A. Pettersson, F. Carlsson, O. Inganäs et H. Arwin, *Thin Solid Films* **313-314**, 356 (1998).
- [39] D.W. Thompson, M.J. DeVries, T.E. Tiwald, J.A. Woollam, *Thin Solid Films* **313-314**, 341 (1998).
- [40] M. Schubert, B. Rheinländer, J.A. Woollam, B. Johs et C.M. Herzinger, *J. Opt. Soc. Am. A* **13**, 875 (1996).
- [41] G.E. Jellison, Jr. et F.A. Modine, *Appl. Opt.* **36**, 8184 (1997).
- [42] H. Wöhler, M. Fritsch, G. Haas et D.A. Mlynski, *J. Opt. Soc. Am. A* **8**, 536 (1991).
- [43] K. Eidner, *J. Opt. Soc. Am. A* **6**, 1657 (1989).
- [44] S.N. Jasperson et S.E. Schnatterly, *Rev. Sci. Instrum.* **40**, 761 (1969).
- [45] R.A. Canillas, E. Pascual, et B. Drévillon, *Rev. Sci. Instrum.* **64**, 2153 (1993).
- [46] P.S. Hauge et F.H. Dill, *Opt. Comm.* **14**, 431 (1975).
- [47] R. Kleim, L. Kuntzler and A. ElGhemmaz, *J. Opt. Soc. Am. A* **11**, 2550 (1994).
- [48] P.S. Hauge, *Surf.Sci.*, **56**, 148 (1976).
- [49] D.E. Aspnes, *J. Opt. Soc. Am.* **66**, 949 (1976).
- [50] R.W. Collins, *Rev. Sci. Instrum.* **61**, 2029 (1990).

- [51] D.E. Aspnes, *Opt. Comm.* **8**, 222 (1973).
- [52] P.S. Hauge et F.H. Dill, *IBM J. Res. Develop.* **17**, 472 (1973).
- [53] D.E. Aspnes, *J. Opt. Soc. Am.* **64**, 812 (1974).
- [54] R.W. Stobie, B. Rao et M.J. Dignam, *Appl. Opt.* **14**, 999 (1975).
- [55] Ilsin An et R.W. Collins, *Rev. Sci. Instrum.* **62**, 1904 (1991).
- [56] J.B. Theeten, F.Simondet, M. Erman et J.Pernas, *Proc.of the 4th. Int.Conf.on Solide Surface* **201**, 1071 (1980).
- [57] M. Erman, "Ellipsométrie spectroscopique du proche IR au proche UV., appareillage et méthodologie. Application à l'étude de l'implantation ionique dans les semi-conducteurs, (Thèse de doctorat, Université d'Orsay, Mars 1982).
- [58] A. Straaijer, M.H.W. Verbruggen, J.J.M. de Nijs et H.H. Brongersam, *Rev. Sci. Instrum.* **64**, 1468-1473 (1993).
- [59] R.W. Collins, *Rev. Sci. Instrum.* **61**, 8 (1990).
- [60] Ilsin An, Y. M. Li, V. Nguyen, R.W. Collins, *Rev. Sci. Instrum.* **63**, 8 (1992).
- [61] E. Compain, "Conception et réalisation d'un ellipsomètre de Mueller achromatique fonctionnant en temps réel," (Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique, Avril 1999).
- [62] D.J. De Smet, *J. Appl. Phys.* **76**, 2571 (1994).
- [63] J.A. Nelder et R. Mead, *J. Compt.* **7**, 308 (1965).
- [64] D.W. Marquart, *J. Soc. Ind. Appl. Math.* **11**, 431 (1963).
- [65] R. W. Stobie, B. Rao et M. J. Dignam, *J. Opt. Soc. Am.* **65**, 25 (1975).
- [66] F. Ferrieu et J.H. Lecat, *Thin Solid Films* **164**, 43 (1988).
- [67] A. Pawlowski "Contribution à l'étude d'un ellipsomètre spectroscopique : mise en oeuvre, programme d'exploitation, calibrage, erreurs aléatoires, système optique" (Mémoire CNAM, Metz, 1995).

- [68] S. Bertucci "Contribution à l'étude d'un ellipsomètre spectroscopique : mise en oeuvre, programme d'exploitation, calibrage, erreurs systématiques, détection" (Mémoire CNAM, Metz, 1995).
- [69] R.H. Muller, *Surf. Sci.* **16**, 14 (1969).
- [70] P.S. Hauge, R.H. Muller et C.G. Smith, *Surf. Sci.* **96**, 81 (1980).
- [71] M. Luttmann, "Ellipsométrie spectroscopique à angle variable. Applications à l'étude des propriétés optiques de semi-conducteurs II-VI et à la caractérisation de couches à gradient d'indice," (Thèse de l'Université Joseph Fourier, Grenoble, 1992).
- [72] S. Bertucci, A. Pawlowski, N. Nicolas, L. Johann, A. El Ghemmaz, N. Stein et R. Kleim, *Thin Solid Films* **313-314**, 73 (1998).
- [73] Y.F. Nicolau, *Nucl. Instrum. Meth.* **213**, 13 (1983).
- [74] J.P. Ponpon et M. Sieskind, *Nucl. Instrum. Meth. A.* **380**, 173 (1996).
- [75] W.R. Willig, *Nucl. Instrum. Meth.* **96**, 615 (1971).
- [76] A. Nabaoui "Contribution à l'étude de quelques propriétés de photodiodes à base d'iodure mercurique ( $\alpha$ -HgI<sub>2</sub>)" (Thèse de l'université Louis Pasteur de Strasbourg, 1996).
- [77] A. Anedda, E. Grilli, M. Guzzi, F. Raga, and A. Serpi, *Solid State Commun.* **39**, 1121 (1981).
- [78] M. Schieber, R. Calston, H. Lamonds, P. Randtke, Schnepfle et Llacer, *J. Cryst. Growth* **24-25**, 205 (1974).
- [79] H.L. Malm, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* NS 19, **3**, 263 (1972).
- [80] J. Dennis et H.K. Henisch, *J. Electrochem. Soc.* **114** 263 (1967).
- [81] Schieber, Schnepfle et V.D. Berg, *J. Cryst. Growth* **33** 125 (1976).
- [82] J.P. Ponpon, R. Stuck, Siffert, B. Meyer et Schwab, *IEEE Trans.* NS 22, (1975).
- [83] G.A. Jeffrey et N. Vlasse, *Inorg. Chem.* **6**, 396 (1967).
- [84] Havighurst, *Am. J. Sci.* **6** 556 (1925).

- [85] Huggins et Magill, *J. Am. Chem. Soc.* **49** 2357 (1927).
- [86] P. Pascal, "Nouveau traité de Chimie Minérale", Vol.V, Masson, Paris, 1962.
- [87] J.H. Yee, J.W. Schlesinger, and G.A. Armantrout, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **NS-23**, 117 (1976).
- [88] D.E. Turner et B.N. Harmon, *Phy. Rev. B* **40**, 10516 (1989).
- [89] Y.C. Chang et R.B. James, *Phy. Rev. B* **46**, 15040 (1992).
- [90] Y.C. Chang et R.B. James, *Phy. Rev. B* **53**, 14200 (1996).
- [91] A.K. Solanki, A. Kashyap, T. Nautiyal, S. Auluck et M.A. Khan, *Phy. Rev. B* **55**, 9215 (1997).
- [92] R. Minder, G. Majni, C. Canali, G. Ottaviani, R. Stuck, J.P. Ponpon, C. Schwab et P. Siffert, *J. Appl. Phys.* **45**, 5074 (1974).
- [93] G. Ottaviani, C. Canali et A.A. Quaranta, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **NS22**, 192 (1975).
- [94] R. Minder, G. Ottaviani et C. Canali, *J. Phys. Chem. Sol.* **37**, 417 (1976).
- [95] R.H. Bube, *Phys. Rev.* 106 (1957).
- [96] T. Goto et Y. Nishina, *Sol. Stat. Commun.* **25**, 123 (1978).
- [97] B. Novikov et M. Pimonenko, *Sov. Phys. Semicond.* **4**, 1785 (1971).
- [98] Del Waulle, François et Wiemann, *C. R.* **207**, 340 (1938).
- [99] M. Pernot, *C. R. Acad. Sci.* **196**, 1314 (1933).
- [100] J.P. Ponpon, M. Sieskind, M. Amann, A. Benz and C. Corbu, *Nucl. Instr. Meth. A* **380**, 112 (1996).
- [101] P.S. Hauge, R.H. Muller and C.G. Smith, "Conventions and formulas for using the Mueller-Stokes calculus in ellipsometry," (North-Holland, 1980).
- [102] P.S. Hauge, R.H. Muller and C.G. Smith, *Surf. Sci.* **96**, 81 (1980).
- [103] M. Sieskind, S. Nikitine and J.B. Grun, *Journal de Physique* **20**, 557 (1959).

- [104] D.E. Aspnes, *J. Opt. Soc. Am.* **70**, 1275 (1980).
- [105] O. Mathieu, "Adaptation d'un ellipsomètre à polariseur tournant à la mesure de corps anisotropes. Mise en oeuvre d'un porte-échantillon rotatif," Note technique de CEA/DTA/LTEI/DOPT/SCPM, Juin 1997.
- [106] A. En Naciri, L. Johann, R. Kleim, M. Sieskind, M. Amann, *Appl. Opt.* **38**, 647 (1999).
- [107] J.F. McGilp, *J. Phys. Condens. Matter* **3**, 7985 (1990).
- [108] P. Chindaudom and K. Vedam, *Appl. Opt.* **32**, 6391 (1993).
- [109] D.G.A. Bruggeman, *Ann. Phys. (Leipzig)*, **24**, 636 (1935).
- [110] R. Stuck, J.C. Muller, J.P. Ponpon, C. Scharager, C. Schwab, P.Siffert *J. Appl. Phys.* **47**, 1545 (1976).
- [111] M. Schieber, R. Roth, H. Yao, M. DeVries, R.B. James, M. Goorsky, *J. Cryst. Growth* **146**, 15 (1995).
- [112] M. Sieskind, A. Nabaoui, B. Carimentrand, M. Amann, J.P. Ponpon et P. Siffert, SPIE Int. Symp. on Optics, Imaging and Instrumentation, San Diego, CA, 1994.
- [113] P. Pascal, "Nouveau traité de Chimie Minérale", Vol.I, Masson, Paris, 1962.
- [114] J.P. Ponpon, M. Amann, M. Sieskind, *Nucl. Instr. Meth. A* **412**, 104 (1998).
- [115] Gallais, *J. chim. phys.* **35**, 212, 1938.
- [116] A. En Naciri, L. Johann and R. Kleim, *Appl. Opt.* sous presse.
- [117] P.S. Hauge, *Surf. Sci.* **56**, 148 (1976).
- [118] R.M.A. Azzam et N.M. Bashara, *J. Opt. Soc. Am.* **64**, 128 (1974).



## Liste des Figures

|     |  |    |
|-----|--|----|
| 1.1 | Définition des plans d'onde et de vibration. Disposition relative des vecteurs ( $\mathbf{E}$ , $\mathbf{H}$ , $\mathbf{D}$ , $\mathbf{B}$ , $\mathbf{P}$ , $\mathbf{s}$ ) dans un milieu anisotrope. . . . .  | 15 |
| 1.2 | Représentation de la surfaces des indices. . . . .   | 20 |
| 1.3 | Surface des indices à deux dimensions. . . . .   | 21 |
| 1.4 | Ellipsoïde des indices. . . . .  | 22 |
| 1.5 | Ellipsoïde des indices dans un milieu uniaxe anisotrope. . . . .   | 25 |
| 2.1 | Réflexion et réfraction sur la surface du cristal. . . . .   | 28 |
| 3.1 | Paramètres de l'état de polarisation elliptique. . . . .   | 47 |
| 3.2 | Différentes formes de l'ellipse en fonction du déphasage. . . . .  | 48 |
| 3.3 | Représentation d'une lumière polarisée rectilignement. a) le long de l'axe Ox; b) le long de l'axe Oy; c) avec une orientation de $45^\circ$ par rapport à l'axe Ox. . . . .   | 49 |
| 3.4 | Réflexion et transmission d'une onde plane monochromatique sur une surface plane séparant les deux milieux 0 et 1. $\theta$ et $\theta_1$ sont, respectivement, les angles d'incidence et de réfraction. . . . .   | 54 |
| 3.5 | Schéma d'un ellipsomètre à extinction . . . . .  | 58 |
| 3.6 | Schéma d'un ellipsomètre photométrique à élément tournant . . . . .  | 60 |
| 3.7 | Paramètres ellipsométriques calculés pour un cristal uniaxe pour les azimuts ( $\varphi = 0, 30^\circ, 50^\circ$ et $90^\circ$ ) en fonction de l'angle d'incidence à $\lambda = 0,49\mu\text{m}$ avec $N_o = 2,724 - i0,454$ et $N_e = 2,523 - i0,375$ . L'indice du milieu ambiant est $n=1$ . . . . . | 65 |

|      |  |     |
|------|--|-----|
| 3.8  | Paramètres ellipsométriques généralisés calculés pour un cristal uniaxe en fonction de l'azimut $\varphi$ à $\lambda = 0,49\mu m$ . . . . .  | 66  |
| 3.9  | Variation de $\chi^2$ en fonction de l'épaisseur de silice. . . . .  | 68  |
| 3.10 | Variation de $\chi^2$ en fonction des indices ordinaire et extraordinaire d'un substrat anisotrope. . . . .  | 69  |
| 3.11 | Schéma du montage de l'ellipsomètre spectroscopique (PRPSE) . . . . .  | 71  |
| 3.12 | Principe d'un double monochromateur réseau prisme. . . . .   | 72  |
| 4.1  | La maille primitive de $HgI_2$ [88]. . . . .   | 83  |
| 4.2  | La structure de bande de $HgI_2$ avec interaction spin orbite. . . . .   | 84  |
| 4.3  | La zone de Brillouin de $HgI_2$ . . . . .  | 85  |
| 4.4  | La structure de bande de $HgI_2$ près du centre de la zone [89]. . . . .   | 86  |
| 4.5  | Spectres expérimentaux de l'échantillon $HgI_2$ avec l'axe optique perpendiculaire à la surface en fonction de la longueur d'onde et de l'angle d'incidence . . . . .  | 91  |
| 4.6  | Indices obtenus pour $HgI_2$ avec l'axe optique perpendiculaire à la surface. Les courbes en traits pleins sont le résultat de la procédure d'ajustement. Ces indices ne représentent pas l'anisotropie optique de $HgI_2$ . À noter qu'il ne s'agit pas non plus de la moyenne entre les indices ordinaire et extraordinaire. . . . . | 92  |
| 4.7  | Normale à l'échantillon confondue avec l'axe de rotation. . . . .  | 95  |
| 4.8  | Sensibilité de l'ellipsomètre à la mesure en fonction de l'angle de rotation de l'échantillon $\varphi$ . . . . .  | 96  |
| 4.9  | Mesure de $\tan \Psi$ et $\cos \Delta$ -Montage en ligne. . . . .  | 97  |
| 4.10 | Spectres expérimentaux de $HgI_2$ à plusieurs angles d'incidence : $50^\circ$ , $55^\circ$ , $60^\circ$ et $65^\circ$ . L'axe optique du cristal est parallèle au plan d'incidence ( $\varphi = 0^\circ$ ). . . . .  | 100 |



- 4.11 (a) Spectres expérimentaux de  $\text{HgI}_2$  avec axe optique normal au plan d'incidence à plusieurs angles d'incidence :  $50^\circ$ ,  $55^\circ$ ,  $60^\circ$ . et  $65^\circ$ . (b) Spectres expérimentaux de  $\text{HgI}_2$  à l'angle d'incidence de  $70^\circ$  pour deux orientations du cristal  $\varphi = 0^\circ$  et  $\varphi = 90^\circ$ . . . . . 101
- 4.12 Constantes optiques ordinaire et extraordinaire de  $\text{HgI}_2$  en comparant avec les résultats de la littérature. L'erreur relative est de l'ordre de 0,02. 103
- 4.13 Comparaison entre les spectres expérimentaux de  $\tan \Psi$  et de  $\cos \Delta$  à l'angle d'incidence  $70^\circ$  et à  $\varphi = 0^\circ$  réalisés sur  $\text{HgI}_2$  directement après polissage puis après 30 heures d'exposition à l'air. . . . . 105
- 4.14 Indices ordinaire  $n_{of}$  et extraordinaire  $n_{ef}$  du film mesurés en fonction de  $\lambda$  sur les échantillons de  $\text{HgI}_2$ . . . . . 108
- 4.15 Comparaison entre les spectres expérimentaux de  $\tan \Psi$  et  $\cos \Delta$  réalisés sur  $\text{HgI}_2$  après polissage et des spectres calculés à partir d'un modèle de surface avec un film uniaxe transparent de 9,4 nm sur un substrat uniaxe  $\text{HgI}_2$ . . . . . 109
- 4.16 Images AFM obtenues sur la surface de  $\text{HgI}_2$  : (a) avant le traitement; (b) 12 minutes après le traitement; (c) 545 heures après le traitement avec 10% de KI [111]. . . . . 112
- 4.17 Comparaison entre les spectres expérimentaux de  $\tan \psi$  et  $\cos \Delta$  mesurés et modélisés pour l'échantillon  $\text{HgI}_2$  traité avec une solution de KI puis rincé à l'eau déionisée pendant 20 s. Une bonne corrélation est obtenue entre les spectres expérimentaux et simulés. . . . . 115
- 4.18 Indice de réfraction du complexe formé sur la surface de  $\text{HgI}_2$ . . . . . 117
- 4.19 (a) Evolution de la masse résiduelle de  $\text{KHgI}_3$  en fonction du temps de traitement au KI [100]. (b) Evolution de l'épaisseur de  $\text{KHgI}_3$  en fonction du temps de traitement au KI. . . . . 119
- 5.1 Coefficients  $\alpha'_{2c}$ ,  $\alpha'_{2s}$ ,  $\alpha'_{4s}$  et  $\alpha'_{4c}$  mesurés sur la surface de  $\text{HgI}_2$  en fonction de l'azimut  $\varphi$  à l'énergie  $E=1,97$  eV. . . . . 128

- 5.2 Coefficients de Fourier  $\alpha'_{2c}$  et  $\alpha'_{4c}$  mesurés sur HgI<sub>2</sub> dont l'axe optique est parallèle à la surface et incliné par rapport au plan d'incidence d'un angle azimutal  $\varphi$ . . . . . 129
- 5.3 Coefficients de Fourier  $\alpha'_{2s}$  et  $\alpha'_{4s}$  mesurés sur HgI<sub>2</sub> dont l'axe optique est parallèle à la surface et incliné par rapport au plan d'incidence d'un angle azimutal  $\varphi$ . . . . . 130
- 5.4 Constantes optiques de HgI<sub>2</sub> à la température ambiante. . . . . 131
- 5.5 Exemples de la détermination de l'angle azimutal : orientation de l'axe optique par rapport au plan d'incidence. . . . . 135
- 5.6 Organigramme des possibilités d'études d'un échantillon par ellipsométrie conventionnelle ou par ellipsométrie généralisée. A. O., P. I.,  $\varphi$  et  $\theta$  représentent respectivement l'axe optique, le plan d'incidence, l'angle azimutal et l'angle d'incidence. . . . . 136
- 5.7 Données expérimentales et calculées pour  $\tan \Psi_{pp}$ ,  $\tan \Psi_{ps}$  et  $\tan \Psi_{sp}$  en fonction de l'énergie pour les azimuts  $\varphi = 39^\circ$  et  $120^\circ$ . l'angle d'incidence est  $70^\circ$ . Un excellent accord entre les données théoriques et expérimentales est obtenu pour  $\tan \Psi_{pp}$ . . . . . 138
- 5.8 Données expérimentales et calculées pour  $\cos \Delta_{pp}$ ,  $\cos \Delta_{ps}$  et  $\cos \Delta_{sp}$  en fonction de l'énergie. . . . . 139